ՀԱՅԱՍՏԱՆԻ ՀԱՆՐԱՊԵՏՈՒԹՅԱՆ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԶԳԱՅԻՆ ԱԿԱԴԵՄԻԱ

НАЦИОНАЛЬНАЯ АКАДЕМИЯ НАУК РЕСПУБЛИКИ АРМЕНИЯ

# зълъчиярг Известия **БРДРЧИ ФИЗИКА**

ՀԱՏՈՐ TOM

# **59**

<u>№</u> 1

22 чии "чрыльюзпри" 2гизигичэлрюзпри издательство "гитутюн" нан ра бгъчии Ереван Журнал издается с 1966 г. Выходит 4 раза в год на русском и английском языках

## РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

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

А.А. Ахумян, Э.М. Казарян, Р.Б. Костанян, Х.В. Неркарарян, 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. Рощупкин (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. Մամասախլիսով, 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. Ռոշչուպկին (Ռուսաստան), Մ. Աուզինշ (Լատվիա), Դ. Բուդկեր (Գերմանիա, ԱՄՆ), Տ.Ա. Վարտանյան (Ռուսաստան)

## EDITORIAL BOARD

Karen M. Gambaryan, 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

© Национальная Академия наук Армении Известия НАН Армении, Физика

# ԲՈՎԱՆԴԱԿՈՒԹՅՈՒՆ

Ա. Ավետիսյան, Ռ. Դալլաքյան, Ն. Դոբրովոլսկի, Ա. Գրիգորյան,	
<b>Ա. Մանուկյան, <mark>Ա. Մելքոնյան</mark>, Ի. Մինենկո.</b> Nirta Solid Compact	
թիրախային մոդուլի համար լոկալ թեք թիրախների հովացման պրոցեսների թվային մոդելավորում	3
Հ. Մկրտչյան, Հ. Մարուքյան, Ա. Մկրտչյան, Ա. Շահինյան, Վ. Թադեվոսյան,	
<b>Հ. Ոսկանյան,  Ա.  Մովսիսյան,  Ա.  Հողմրցյան.</b> Էլեկտրամագնիսական կալորիմետրի նախատիպ` կառուցված կապարի վոլֆրամատից	18
Ռ.Վ. Ավետիսյան, Ա.Գ. Բարսեղյան, Յու.Հ. Ղարիբյան, Ա.Վ. Գյուրջինյան,	
<b>Ի.Ա. Քերոբյան, Հ.Ա. Մկրտչյան, Ա.Յու. Պետրոսյան.</b> Ցիկլոտրոն C18/18-	
ի վրա <sup>155</sup> Tb բժշկական իզոտոպի արտադրության հնարավորության	26
	20
Կ.Վ. Աֆանասն, II.Z. Գայսին, Վ.Վ. Գաուզջտեյն, Ց.Մ. Չերեպեննիկով, Մ.Վ.	
հայուն հայուն հայունները հետությունը հետությունը։ Հայունը հետությունը հետությունը հետությունը հետությունը։	
Ճառագայթման հետազոտություն	35
<b>Տ.Ս. Հակոբյան, Ր.Հ. Վարոսյան, Գ.Հ. Հարությունյան.</b> Կիտաևի շղթայի	
պարզ ընդհանրացումը Z₃ պարաֆերմիոնների համար	41
<b>Ա. Կուտուզյան, Վ. Ավետիսյան, Մ. Սուքիասյան.</b> Օպտիկական լուսատարե-	
րում նոր տիպի սիմիլարիտոնների ձևավորումըս	51
H.R. Sahraoui, B. Doumi, A. Mokaddem, D. Bensaid, M. Boutaleb, A. Tadjer,	
A. Yakoubi, A. Sayede. Novel Prediction Using TB-mBJ of Electronic	
Materials	57
S.Y. Liu, D. Gao, L. Wang, W.B. Song, H. Yin, S.T, Wang, Y. Zhu. Experimental	
Optimization, Design Synthesis, and Up-Conversion Luminescence Properties	
of Y <sub>4</sub> GeO <sub>8</sub> : Er <sup>3+</sup> /Yb <sup>3+</sup> Red Phosphors	61
<b>Պ.Գ.Պետրոսյան, Լ.Ն. Գրիգորյան.</b> Կերամիկական պաշտպանիչ	(0)
կառուցվածքների համար բազմաշերտ էներգակլանիչ տակդիր	63
Գ.Ե. Այվազյան, Ա.Ա. Վարդանյան, Ա.Վ. Մեմչենկո. Տարբեր մեթոդներով	_1
ձևավորված սև սիլիցիուսից շերտերի թրջելությունըն	71

<b>Լ.Ս. Երանյան, Ա.Վ. Մարգարյան, Կ.Մ. Ղամբարյան.</b> Բաղադրիչների	
համատեղելիության վերլուծությունը BN-Si-C եռակոմպոնենտ	
նյութական համակարգում	79
Ն.Ռ. Աղամալյան, Հ.Տ. Գյուլասարյան, Է.Ա. Կաֆադարյան, Մ.Ն. Ներսիսյան,	
<b>Ա. Սարգսյան, .Վ. Բաղրամյան.</b> Միկրոալիքային մեթոդով	
ձևափոխված, ցինկի օքսիդով և արծաթով ակտիվացված բնական	
ցեոլիտի օպտիկական և ԷՊՌ սպեկտրոսկոպիա	87
Ա.Պ. Անտոնյան, Պ.Հ. Վարդևանյան, Մ.Ս. Միքաելյան, Գ.Հ. Քոչարյան, Գ.Հ.	
<b>Պողոսյան, Մ.Ա. Փարսադանյան.</b> Սինթետիկ միաշղթա և երկշղթա	
պոլիռիբոնուկլեոտիդների հետ էթիդիումի բրոմիդի համալիրների	
կլանման և ֆլուորեսցենտային բնութագրիչները	95
<b>Գ.Ա. Օհանասն</b> . Միկրոայիքների տարածուման առանձնահատկություն-	
ները հաղորդիչ ձողերից պատրաստված երկշերտ մետամակերես-	
ներով	104
Դ.Ա. Բաղորապան, Ա.Ա. Նահատերան, Վ.Ա. Հարությունան.	
2.00 $1$ $1$ $1$ $1$ $1$ $1$ $1$ $1$ $1$ $1$	
ելեկտողնային վիճակների վրա հայտնուկներով CdSe նանոթիթերում	110
	110
<b>Լ.Ա. Հարությունյան.</b> Շռաբլոկ Հաուէ ինտերֆերոսետրի վրա հիսնված	
ռենտգենյան փուլային կոնտրաստը արտապատկերող սարքի լուծող	110
ուժի բարձրացում	118

# CONTENTS

A.	Avetisyan, R. Dallakyan, N. Dobrovolski, A. Manukyan, A. Melkonyan,
	A. Grigoryan, I. Sinenko. Numerical Modeling of Cooling Processes of a Locally
	Inclined Target with a Nirta Solid Compact Target Module
H.	Mkrtchyan, H. Marukyan, A. Mkrtchyan, A. Shahinyan, V. Tadevosyan,
	H. Voskanyan, A. Movsisyan, A. Hoghmrtsyan. A Prototype of Electromagnetic
	Calorimeter Constructed of Lead Tungstate
R.V	. Avetisyan, A.G. Barseghyan, Yu.H. Gharibyan, A. V. Gyurjinyan, I.A. Kerobyan,
	<b>H.A. Mkrtchyan, A.Yu. Petrosyan.</b> Investigation of Production Possibility of Medical Isotope <sup>155</sup> Tb on Cyclotron C18/18
K. A	Afanasyev, R. Gaisin, V. Gauzshtein, Yu. Cherepennikov, M. Shevelev. Simulation of
	Secondary X-Ray of Sterilization Setup Based on High-Current Pulse Electron
	Accelerator SINUS-320
T.S.	Hakobyan, R.H. Varosyan, G.H. Harutunyan. Simple Extension of Kitaev Chain for Z <sub>3</sub>
	Parafermions
A. I	Kutuzyan, V. Avetisyan, M. Sukiasyan. Generation of a New Type of Similaritons in Optical Fibers
H.R	. Sahraoui, B. Doumi, A. Mokaddem, D. Bensaid, M. Boutaleb, A. Tadjer, A.
	Yakoubi, A. Sayede. Novel Prediction Using TB-mBJ of Electronic Properties,
	Magnetic Exchange Couplings, and Half-Metallicity in CrCaSe Materials
S.Y.	Liu, D. Gao, L. Wang, W.B. Song, H. Yin, S.T, Wang, Y. Zhu. Experimental
	Optimization, Design Synthesis, and Up-Conversion Luminescence Properties of
	Y <sub>4</sub> GeO <sub>8</sub> : Er <sup>3+</sup> /Yb <sup>3+</sup> Red Phosphors
P.G	. Petrosyan, L.N. Grigoryan. Multilayer Energy Absorbing Substrate for Two-Layer
	Barriers with an External Ceramic Layer
G.Y	. Ayvazyan, A.A. Vardanyan, A.V. Semchenko. Wettability of Black Silicon Layers
	Formed py Different Methods
L.S.	Yeranyan, A.V. Margaryan, K.M. Gambaryan. Miscibility Gaps Analysis for BN-
	Si-C Ternary Material System
N.R	. Aghamalyan, H.T. Gyulasaryan, E.A. Kafadaryan, M.N. Nersisyan, A.A. Sargsyan,
	V.V. Baghramyan. Optical and EPR Spectroscopy of Microwave-Modified Natural
	Zeolite Activated with Zinc Oxide and Silver
A.P.	. Antonyan, P.O. Vardevanyan, M.S. Mikaelyan, G.H. Kocharyan, G.H. Poghosyan,
	M.A. Parsadanyan. Absorption and Fluorescence Characteristics of the Binding of
	Ethidium Bromide with Synthetic Single- and Double-Stranded Polyribonucleotides
G. (	Dhanyan. Features of Microwave Propagation through a Two-Layer Meta Surface Made
	of Conductive Rods
D.A	. Baghdasaryan, A.A. Nahapetyan, V.A. Harutyunyan, H.A Sarkisyan. Influence of
	Magnetic Field on the Electron States in CdSe Nanoplatelets with Impurities
L.A	. Haroutunyan. Increase in the Resolution of Hard X-Ray Phase-Contrast Imaging in a
	Device Based on a Triple Laue-Case Interferometer

# СОДЕРЖАНИЕ

A. Ab	етисян, Р. Даллакян, Н. Добровольский, А. Григорян, А. Манукян, А. Мелконян,
	И. Синенко. Численное моделирование процессов охлаждения локально
	наклонной мишени с мишенным модулем Nirta Solid Compact
Г.Г.	Мкртчян, Г.О. Марукян, А.Г. Мкртчян, А.А. Шагинян, В.О. Тадевосян,
	А.В. Восканян, А.Г. Мовсисян, А.Х. Огмрцян. Прототип электромагнитного
	калориметра из вольфрамата свинца 1
P.B.	Аветисян, А.Г. Барсегян, Ю.А. Гарибян, А.В. Гюрджинян, И.А. Керобян,
	А.А. Мкртчян, А.Ю. Петросян. Исследование возможности производства
	медицинского изотопа <sup>155</sup> Тb на циклотроне C18/18 2
К.В.	Афанасьев, Р.Х. Гайсин, В.В. Гаузштейн, Ю.М. Черепенников, М.В. Шевелев.
	Исследование вторичного рентгеновского излучения стерилизатора на основе
	сильноточного ускорителя электронов СИНУС-320
T.C.	Акопян, Р.Г. Варосян, Г.Г. Арутюнян. Простое обобщение цепочки Китаева
	для Z <sub>3</sub> парафермионов
А. Ку	утузян, В. Аветисян, М. Сукиасян. Генерация нового типа симиляритонов в
	оптических волокнах
H.R.	Sahraoui, B. Doumi, A. Mokaddem, D. Bensaid, M. Boutaleb, A. Tadjer, A.
	Yakoubi, A. Sayede. Novel Prediction Using TB-mBJ of Electronic Properties,
	Magnetic Exchange Couplings, and Half-Metallicity in CrCaSe Materials
S.Y.	Liu, D. Gao, L. Wang, W.B. Song, H. Yin, S.T, Wang, Y. Zhu. Experimental
	Optimization, Design Synthesis, and Up-Conversion Luminescence Properties of
	$Y_4 GeO_8: Er^{3+}/Yb^{3+} Red Phosphors \dots \qquad $
П.Г.	Петросян, Л.Н. Григорян. Многослойная энергопоглощающая подложка для
	двухслойных преград с внешним керамическим слоем
Г.Е.	Айвазян, А.А. Варданян, А.В. Семченко. Смачиваемость слоев черного
	кремния, сформированных различными методами
Л.С.	Еранян, А.В. Маргарян, К.М. Гамбарян. Анализ смешиваемости компонентов
	в тройной материальной системе BN-S1-С
H.P.	Агамалян, А.Т. Гюласарян, Е.А. Кафадарян, М.Н. Нерсисян, А.А. Саргсян,
	В.В. Баграмян. Оптическая и ЭПР-спектроскопия модифицированного
	микроволновым методом натурального цеолита, активированного оксидом
۸П	динка и серебром
А.П.	Антонян, п.О. Бардеванян, м.С. микаелян, г.г. кочарян, г.А. погосян,
	м.А. парсаданян. Аосороционные и флуоресцентные характеристики
	полирибонуклеотилами
Г	
1.	огания. Сообенности прохождения микроволны через двухелоиную 10 метаповерхность из проволящих стержней
ΠΔ	Багласарян А А Наалетан В А Арутюнан А А Саркисан Влияние
д.л.	магнитного поля на электронные состояния в нанопластинке CdSe с примесями 11
ПА	Арутюнян Повышение разрешающей способности отображения речтеновского
	фазового контраста в устройстве основанном на трехблочном паузвском
	интерферометре

, № 1, 2024

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.3–17 (2024) УДК 621.039.8.002 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-3

# ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ОХЛАЖДЕНИЯ ЛОКАЛЬНО НАКЛОННОЙ МИШЕНИ С МИШЕННЫМ МОДУЛЕМ NIRTA SOLID COMPACT

## <u>А. АВЕТИСЯН</u>, Р. ДАЛЛАКЯ<u>Н</u>, <u>Н. ДОБРОВ</u>ОЛЬСКИЙ<sup>\*</sup>, А. ГРИГОРЯН, А. МАНУКЯН, <u>А. МЕЛКОНЯН</u>, И. СИНЕНКО

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

\*e-mail: n.dobrovolski@aanl.am

(Поступила в редакцию 23 ноября 2023 г.)

Разработаны новые мишени локально-наклонного типа для производства медицинских изотопов, которые можно использовать при облучении пучками протонов высокой интенсивности. Приводятся результаты численного анализа тепловых процессов в локально-наклонных мишенях из прессованного порошка молибдена с подложками из ниобия для мишенного модуля Nirta Solid Compact Model TS06. Такие мишени используются при производстве медицинского радиоизотопа Tc-99m. Расчёты проведены с помощью инженерного пакета Fluent Flow (Fluent) программной платформы ANSYS Workbench 18.2. для вариантов мишеней с линейными и аксиально-симметричными гофрами в зоне облучения протонами. Показано, что на различных моделях локально-наклонных мишеней с увеличенной в 2.37 раз площадью охлаждения можно добиться увеличения тока облучения в 1.34–1.46 раз по сравнению со стандартной плоской мишенью. Проведен анализ распределения тепловых потоков и температур в мишенях.

#### 1. Введение

Для производства медицинских изотопов на протонных циклотронах часто используется мишенный модуль Nirta Solid Compact Model TS06. Особенностью этого модуля является простота и надёжность конструкции, однако то, что пучок протонов падает на облучаемую плоскую мишень перпендикулярно её поверхности [1, 2], является скорее недостатком конструкции, поскольку фактически сводит к минимуму доступные для охлаждения площади мишени и подложки. Как следствие, это ограничивает допустимую интенсивность облучения мишени изза опасности её перегрева током пучка [3].

Для высокоинтенсивного облучения используются наклонённые по отношению к пучку плоские мишени, в которых одновременно уменьшена толщина мишени и увеличена поверхность охлаждения, причем в несколько раз [4–7]. К сожалению, такие мишени и соответствующие им мишенные модули гораздо сложнее в реализации.

В работе [8] мы предложили модифицированный вариант конструкции мишени и её подложки для мишенного модуля Nirta Solid Compact, который сочетает достоинства указанного модуля и целиком наклонной плоской мишени. Мы назвали такую конструкцию мишени с соответствующей подложкой локальнонаклонной мишенью (ЛНМ). Главным отличием предложенной конструкции от исходной является то, что подверженная облучению плоская часть стандартной подложки и сама плоская мишень заменяются на подобным образом гофрированные элементы. За счёт этого поверхность охлаждения ЛНМ с обеих сторон увеличивается, а толщина облучаемых частей мишени и подложки уменьшается, практически так же, как и в полностью наклонных мишенях. При этом ЛНМ остаётся совместимой с мишенным модулем Nirta Solid Compact.

В настоящей работе приводятся результаты численного анализа тепловых процессов в локально-наклонных мишенях из прессованного порошка молибдена с подложками из ниобия, которые могут использоваться при производстве медицинского радиоизотопа Tc-99m. Расчёты проведены с помощью инженерного пакета Fluent Flow (Fluent) программной платформы ANSYS Workbench 18.2 [9].

### 2. Описание рабочей модели и расчётной процедуры

В качестве моделей для расчётов мы остановились на двух вариантах ЛНМ и на стандартной плоской мишени, используемой как эталон: ЛНМ с аксиальносимметричными гофрами – «Двойная Аксиальная Мишень (ДАМ)»; ЛНМ с линейными гофрами – «Двойная Линейная Мишень (ДЛМ)»; «Стандартная плоская мишень (СПМ)». Слово «двойная» в названиях подчеркивает факт одновременного гофрирования и мишени, и подложки.

Особенности конструкции локально-наклонных мишеней ДАМ и ДЛМ с подложками показаны на рис.1. На рис.1а изображено сечение ДЛМ, на рис.1b – сечение ДАМ. Облучаемая часть мишеней – гофрированный круговой участок в центре. Тело мишени – спрессованный порошок молибдена – гофры, расположенные сверху облучаемого участка. Остальной объём – это подложка мишени из ниобия. Пучок протонов падает на мишени сверху вдоль оси симметрии облучаемой круговой области.

Подложки мишеней функционально состоят из двух частей – облучаемых пучком протонов, гофрированных, и необлучаемых, гладких, расположенных в виде кольца на периферии. В программе гофрированные фрагменты подложек – это домены с внутренним энерговыделением и теплообменом, а периферийные фрагменты – это домены только с теплообменом. Отметим, что физической границы раздела между облучаемой и необлучаемой частями в подложках нет, это одна деталь. Виртуальная граница введена для удобства учёта внутреннего



Рис.1. Сечения (a) ДЛМ и (b) ДАМ плоскостью симметрии. Вспомогательные линии на рисунке ДЛМ демонстрируют углы раскрытия отдельного гофра. Изображен вариант с равными углами раскрытия для мишени и для подложки.

энерговыделения в подложках из-за поглощения энергии пучка.

Достоинство предложенных нами локально-наклонных мишеней в том, что облучать их можно в стандартном мишенном модуле Nirta Solid Compact и иметь при этом выигрыш и по площади охлаждения, и по толщине, как и на соответствующих эллиптических «глобально-наклонных» мишенях, нуждающихся в более сложных мишенных модулях [10].

Кроме ниобия в качестве материала для подложки мы рассматривали также титан и медь. Как и ожидалось, теплопроводность материала подложки существенно влияет на тепловые характеристики локально-наклонных мишеней. Поскольку ниобий из трёх перечисленных материалов имеет промежуточное значение теплопроводности, то в настоящей работе мы решили именно на нём продемонстрировать наиболее типичные особенности ЛНМ. Специфика поведения ЛНМ с подложками из титана и меди заслуживает отдельного рассмотрения.

Взаимное расположение основных компонентов рабочей модели ДЛМ для программы показано на рис.2, где также изображена расчётная сетка модели. Сетка содержит примерно 130 тыс. узлов и 600 тыс. элементов. На рисунке видно, что сетка имеет переменный шаг, который заметно уменьшается в окрестности поверхностей и мелкомасштабных элементов. Особенно явно это видно на гофрах мишени и подложки, а также в прилегающих к ним пограничных слоях гелия и воды.

Изображенная на рис.2 рабочая модель содержит разнородные домены (компоненты) являющиеся твердыми телами (мишень с подложкой, позиции *l* и *6*), жидкостью (водой, позиции 7 и 8), и газом (гелием, позиции 2–5). Причем мишень и подложка в процессе облучения неподвижны, а вода и гелий находятся в движении. Рис.2 достаточно полно представляет модель в статичном состоянии, однако гидродинамические аспекты поведения модели в рабочем состоянии на



Рис.2. Центральное сечение рабочей модели ДЛМ плоскостью симметрии. Отображено взаимное расположение компонентов модели и расчётная сетка: *l* – мишень и облучаемая часть подложки (на рисунке видны, как зигзагообразная полоса); *2* – вход потока гелия; *3* – гелиевая камера; *4* – виртуальная граница гелиевой камеры; *5* – выход потока гелия; *6* – необлучаемая часть подложки; *7* – кольцевой коллектор для сбора и отвода отработанного потока воды; *8* – сопло подачи охлаждающей воды.

нем не отображены совсем, что может затруднить понимание её теплофизических характеристик.

Гидродинамические и теплофизические аспекты поведения модели ДЛМ иллюстрируются рис.3, где основные домены (компоненты) представлены в активном состоянии – вода и гелий в движении, а мишень и облучаемая часть подложки генерируют тепло; рис.3а – установившееся распределение температуры мишени и подложки на фоне потоков воды и гелия в плоскости центрального сечения модели плоскостью симметрии, показанной на рис.2; рис.3b – эти же величины, но в объеме гелиевой камеры.



Рис.3. Распределение температуры в мишени и подложке (а) на фоне потоков воды и гелия на плоскости симметрии и (b) на фоне потоков гелия в объеме гелиевой камеры. Обозначения на рис.3 такие же, как и на рис.2. Позиции 6–8 на рис.3b не отображены, чтобы открыть дополнительный обзор облучаемой части подложки.

Обращает на себя внимание отчетливая турбулентность обоих потоков, а также то, что в гелии температура ребер рельефа мишени выше температуры её ближайших участков, а в воде наоборот – ребра подложки холоднее. Отчетливо заметны небольшие застойные зоны в окрестности входа и выхода потока гелия в гелиевую камеру, приводящие к перегреву ребер мишени в указанных местах. Видно также, что в мишенном модуле Nirta Solid Compact вода через сопло подачи 8падает на центральную область подложки *1* перпендикулярно её поверхности, а затем равномерно растекается в стороны в радиальном направлении к приемному коллектору 7. Вследствие этого вокруг центра неизбежно возникает застойная зона, в которой касательный к поверхности подложки поток воды только формируется от нулевого значения скорости в центре до максимального, расположенного примерно на половине радиуса подложки напротив кромки подающего сопла. Обратный процесс имеет место вблизи наружного диаметра подложки 1. Здесь напротив входа в отводящий коллектор 7 касательная компонента скорости воды снова падает до нуля. Кольцевидная зона повышенной касательной компоненты скорости воды формирует зону повышенной теплопередачи от подложки, что выражается в снижении её температуры в окрестности этой зоны, особенно на ребрах.

При расчётах и анализе результатов мы придерживались следующих подходов: теплофизические характеристики включённых в модель веществ брались из библиотеки программной платформы ANSYS и справочника [11]. Согласно правилам ANSYS, знак теплового потока считался отрицательным, если тело теряло энергию. Плотность, удельная теплоёмкость и теплопроводность спрессованного порошка молибдена – тела мишени, считались равными 63% от соответствующих значений для металлического молибдена. Это значение было определено нами экспериментально по измерениям плотности спрессованного порошка на специально изготовленных прототипах мишеней и экстраполировано на остальные величины. Максимальный размах гофров для всех вариантов мишеней был выбран равным 2 мм – это, во-первых, не противоречило требованию совместимости по размерам с мишенным модулем Nirta Solid Compact и, во-вторых, давало возможность получить максимально возможное увеличение площади охлаждения за счёт гофрирования. Угол раскрытия гофров α для данной модели с подложкой из ниобия принимался равным примерно 50°.

Расчет проводился при следующих начальных и граничных условиях: температуры зажима, удерживающего подложку мишени, а также воды и гелия на входе в систему охлаждения равны 22°С и во время облучения не меняются. Теплообмен на внешних стенках гелиевой и водяной систем отсутствует. Необлучаемая часть подложки передает тепло в зажим со своей внешней поверхности с постоянным «среднестатистическим» коэффициентом теплопередачи, равным 350 Вт/К×м<sup>2</sup>. Тепловое сопротивление на всех контактирующих поверхностях равно нулю. Давления гелия и воды на входе в систему охлаждения равны 0.2 и 0.5 Мпа, соответственно. Начальная энергия пучка протонов равна 18 МэВ. Ток пучка протонов равен 10 мкА и равномерно распределён по кругу диаметром 12 мм вокруг центра мишени.

Толщина молибденовой мишени из спрессованного порошка  $D_{Mo63}$  была подобрана так, чтобы пучок протонов терял в мишени энергию от 18 до 13.5 МэВ, т.е. всего 4.5 МэВ. При облучении молибдена в указанном диапазоне энергий должен получаться максимальный выход конечного продукта – радиоизотопа технеция [12]. Для определения необходимого численного значения  $D_{Mo63}$  с помощью программ SR-NIEL residual particle energy traversing an absorber [13] подбиралось такое значение параметра Traversing Depth, при котором достигалось требуемое ослабление энергии пучка в молибдене. Это значение оказалось равным 0.27 г/см<sup>2</sup>. Далее вычислялась плотность спрессованного порошка молибдена, равная 63% от плотности металлического молибдена, т.е. 6.63 г/см<sup>3</sup>. Толщина  $D_{Mo63}$  определялась из полученных чисел по формуле  $D_{Mo63}$  = 0.27 / 6.63 = 0.04 см. Описанное определение толщины  $D_{Mo63}$  было справедливо для СПМ с ортогональным падением пучка протонов на поверхность порошка. В случае наклонного падения пучка на поверхность гофра, как у ДЛМ или ДАМ полученная выше величина 0.04 см должна равняться пути, проходимому пучком протонов при полном пересечении наклонённого порошкового слоя. Физическая толщина спрессованного порошка  $d_{Mo63}$ , измеренная перпендикулярно поверхности гофра, в этом случае должна определяться по элементарной формуле  $d_{Mo63} = D_{Mo63} sin(\alpha/2)$ , где  $\alpha$  – это угол раскрытия. Для  $\alpha = 50^{\circ}$  формула приводит к значению  $d_{Mo63} = 0.017$  см. Отметим, что последняя формула справедлива и для плоской модели СПМ, где  $\alpha = 180^{\circ}$  и  $d_{Mo63} = D_{Mo63}$ .

Толщина подложки из ниобия  $D_{\rm Nb}$  была подобрана так, чтобы пучок протонов полностью терял в ней всю оставшуюся после прохождения мишени энергию, т.е. 13.5 МэВ. В этом случае указанная выше программа давала для величины Traversing Depth значение 0.45 г/см<sup>2</sup>. Принимая во внимание это значение и то, что плотность ниобия равна 8.57 г/см<sup>3</sup> для  $D_{\rm Nb}$ , получалось число  $D_{\rm Nb} = 0.45 / 8.57 = 0.053$  см. Физическая толщина ниобия  $d_{\rm Nb}$ , измеренная перпендикулярно поверхности гофра, определялась по той же формуле  $d_{\rm Nb} = D_{\rm Nb} \sin(\alpha/2)$ , что приводило к значению  $d_{\rm Nb} = 0.022$  см. Это была минимально допустимая толщина, необходимая для полного поглощения остаточной энергии пучка.

Принималось, что в теле мишени – спрессованном порошке, при прохождении пучка протонов выделяется тепловая энергия с мощностью 45 Вт (45 Вт = 10 мкА × 4.5 МэВ). Аналогично, в облучаемой части подложки – гофрированном фрагменте, выделяется тепловая энергия с мощностью 135 Вт (135 Вт = 10 мкА × 13.5 МэВ). Суммарное тепловыделение в мишени и подложке при токе пучка 10 мкА принималось равным сумме указанных величин и равным (45 + 135) Вт = 180 Вт.

Угол раскрытия гофров а ~50° позволил получить удобную для практической реализации модель. Из геометрического рассмотрения структуры гофров видно, что площадь охлаждения ЛНМ с углом раскрытия а возрастает по сравнению с СПМ на коэффициент  $k_{\rm S} = 1/\sin(\alpha/2)$ . При  $\alpha = 50^{\circ}$  для указанного геометрического коэффициента «усиления» площади получается значение  $k_{\rm S} = 2.37$ . Во столько же раз уменьшается толщина мишени.

При анализе результатов учитывался тот факт, что при конвективной теплопередаче от твердой поверхности к воде существует критический поток тепла, при превышении которого теплопередача резко ухудшается [14].

### 3. Результаты моделирования и обсуждение полученных результатов

В контексте поставленной задачи – представления концепции локальнонаклонных мишеней, мы остановились на описании и анализе трёх наиболее характерных, на наш взгляд, величин, таких, как: интегральные тепловые потоки от мишеней в гелий и от подложек в воду (внешний теплообмен), тепловые потоки от мишеней к подложкам и обратно (внутренний теплообмен) и на распределении установившихся температур в мишенях и подложках.

Мы ограничились представлением результатов только для модели с равномерным «нейтральным» распределением тока пучка по поверхности мишеней, поскольку распределение плотности тока в пучке само по себе является независимым фактором влияния на тепловые характеристики мишеней [3, 15]. Таким выбором модели для расчётов мы стремились сосредоточиться на роли именно «локальной наклонности» в тепловых характеристиках предложенных мишеней.

#### 3.1. Интегральные тепловые потоки в гелий и воду

В качестве отправной точки для анализа мы исходили из того факта, что в теле мишени выделяется 45 Вт тепловой мощности, а в облучаемой части подложки – 135 Вт. Каналов рассеяния этой мощности всего три по числу поверхностей, охватывающих область энерговыделения – гофры мишени и подложки. Это поток тепла непосредственно в гелий через поверхность мишени, поток тепла непосредственно в воду через поверхность подложки и потоки в боковые стороны – в необлучаемую часть подложки, через неё в зажим (на рисунках не показан) и далее снова в воду. Ясно, что внутренние перетоки тепла между

мишенью и подложкой на внешний баланс тепла не влияют. Результаты расчёта представлены в табл.1, где приведены численные значения физических величин  $HF_{Int}$  [BT] – интегралов плотности теплового потока из мишени или подложки по соответствующим поверхностям. Для наглядности, в отдельной строке значения этих же величин представлены в относительной форме, в процентах по отношению к полному энерговыделению, равному 180 Вт. Из приведенных чисел видно, что тепловые потоки непосредственно в гелий и воду доминируют по сравнению с потоками в зажим – держатель мишени. Анализом последнего теплоотвода в данном рассмотрении заниматься не будем ввиду его малости. В таблице сохранен подход программы к определению знака теплового потока – он считается отрицательным, если тело теряет энергию.

Обращает на себя внимание, что в СПМ из 45 Вт, выделяющихся в мишени, всего около 6 Вт непосредственно снимаются потоком гелия. Остальное тепло через подложку и зажим перетекает в воду, что отчётливо отражается в числах:

		СПМ		ДАМ		ДЛМ Поток гелия по- перек гофров		ДЛМ Течение гелия вдоль гофров				
Направление теп- лового потока	Из мишени в ге- лий	Из подложки в воду	В зажим	Из мишени в ге-	Из подложка в	В зажим	Из мишени в ге- лий	Из подложки в воду	В зажим	Из мишени в ге-	Из подложка в	В зажим
HF <sub>Int</sub> [ BT ]	-6.07	-169.99	-3.94	-17.66	-158.71	-3.63	-11.10	-162.79	-6.11	-9.54	-164.39	-6.07
% or 180 Br	3.37	94.44	2.19	9.81	88.17	2.02	6.16	90.44	3.39	5.30	91.33	3.37

Табл.1. Интегральный тепловой поток *HF* Int [Вт] из мишени в гелий и из облучаемого участка подложки в воду для различных вариантов ЛНМ

для ДЛМ и ДАМ поток тепла в воду непосредственно через поверхность подложки равен примерно 160 Вт, что заметно больше 135 Вт, выделяющихся непосредственно в самой подложке.

Во всех рассмотренных вариантах ЛНМ теплопередача в гелий существенно больше, чем в СПМ. В ДАМ, например, она достигает 17.66 Вт, т.е. увеличивается практически в три раза. Отметим, что прирост площади теплообмена при переходе от СПМ к любой другой ЛНМ в анализируемой модели происходит в  $k_{\rm S}$  раз, т.е. всего в 2.37 раза. Одной из очевидных причин «опережающего» роста теплопередачи в гелий может быть то, что гофры в ЛНМ играют роль весьма

эффективного завихрителя потока, улучшающего теплоотдачу к гелию за счёт создания турбулентности (см. рис.3).

Кроме турбулентности могут быть и другие менее очевидные причины для роста теплопередачи в гелий, одна из которых будет рассмотрена ниже. Но, в любом случае можно однозначно утверждать, что роль теплоотвода от мишени через поток гелия во всех ЛНМ существенно возрастает по сравнению с СПМ.

## 3.2. Распределение плотности тепловых потоков на охлаждаемых поверхностях мишени и подложки

Распределение плотности тепловых потоков на охлаждаемых поверхностях мишени и подложки показано на рис.4–6, где соблюден заложенный в программу подход к определению знака теплового потока – он считается отрицательным,



Рис.4. Плотность теплового потока через поверхность подложки в воду для (а) ДЛМ и для (b) СПМ. На рис.4а гофры расположены вертикально так, что через центр проходит долина рельефа подложки. Далее хребты и долины чередуются. Видны зоны пониженной плотности теплового потока вокруг центров и на периферии у обеих подложек. Из приведенных на рис.4а данных видно, что поперечное обтекание гофров водой (направление влево–вправо от центра) обеспечивает большую теплопередачу от подложки, чем продольное (направление вверх–вниз от центра).



Рис.5. Плотность теплового потока через поверхность мишени в гелий для (а)ДЛМ и для (b) СПМ. На рис.5а гофры расположены вертикально так, что через центр проходит хребет рельефа мишени. На рис.5а имеет место поперечное обтекание гофров гелием, благодаря чему поток гелия равномерно распределяется над поверхностью мишени и обеспечивает её весьма однородное охлаждение.



Рис.6. Тепловые потоки из (а) мишени в подложку и из (b) подложки в мишень для ДЛМ. В программе включён режим отображения Clip to Range. Это привело к тому, что на рисунках отобразились величины только из диапазонов, указанных на соответствующих шкалах: на рис.6а только отрицательные, на рис.6b – только положительные. Символами V1, V2 и V11, V12 обозначено положение двух первых и двух последних долин на рельефе мишени.

если тело теряет энергию. Для сохранения естественности восприятия некоторых рисунков шкалы для плотности тепловых потоков Heat Flux слева от изображений инвертированы. На всех рисунках поток гелия направлен слева направо.

Для удобства последующего описания тепловых свойств мишеней с гофрированным рельефом введём условные термины «долина» и «хребет» по ассоциации с горным рельефом. Согласно этой терминологии, пересечения вспомогательных линий на рис.1а расположены в долинах рельефов мишени и подложки. В контексте данной работы долина представляет из себя заглублённый в твёрдое тело гофр, а хребет – выпирающий гофр, окружённый гелием или водой. Гофры подложки и мишени согласованы: под каждым окруженным газообразным гелием хребтом мишени расположена заполненная водой долина подложки.

Для анализа рис.4–5 приведенных выше определений достаточно. Рис.6 более сложный в интерпретации. Чтобы избежать путаницы на рис.6а, b введены вспомогательные метки V1, V2, и V11, V12, подсказывающие местоположение двух первых и двух последних долин на рельефе мишени ДЛМ.

Приведенная на рис.4 карта распределения плотности тепловых потоков от ниобиевых подложек в воду показывает, что для обеих моделей максимальные значения плотности потоков группируются в виде широкой круговой зоны, расположенной примерно на половине радиуса, где скорость воды максимальна (см. рис.3а). Плотность теплового потока в воду непосредственно вокруг центра мишени и вблизи её наружного диаметра заметно ниже, чем в указанной зоне.

Причину такого поведения мы видим в фундаментальной зависимости теплопередачи от твердого тела к охлаждающей воде от её скорости: чем выше касательная к поверхности компонента скорости воды, тем больше теплопередача [11]. Отметим, что зона повышенной теплопередачи для ДЛМ на рис.4а сама по себе неоднородна: её участки слева–справа от центра лучше отдают тепло в воду, чем аналогичные участки снизу–сверху. Мы объясняем это тем, что слева–справа от центра подложки имеет место примерно поперечное обтекание гофров потоком воды, а снизу–сверху от центра вода течет примерно вдоль долин. Из приведенных данных видно, что поперечное обтекание гофров водой обеспечивает большую теплопередачу от подложки, чем продольное.

На рис.6 в режиме Clip to Range отображены внутренние перетоки тепла через поверхность раздела мишени и подложки. На рис.6а отображаются только области с отрицательными значениями теплового потока из мишени в диапазоне, указанном на его шкале. Как видно из рисунка, эти области практически целиком расположились в долинах мишени. Остальная поверхность мишени, в данном случае это склоны и окрестность хребтов, не окрашивается программой. Тепловой поток в окрашенных областях – долинах, отрицателен, а значит направлен из мишени в подложку. Наличие теплового потока из мишени в подложку ожидаемо, исходя из проведенного выше в разделе 3.1 анализа интегральных потоков тепла.

На рис.6b окрашены только области с положительными значениями теплового потока, т.е. области, где мишень принимает тепло от подложки. Видно, что эти области в основном сосредоточены вблизи хребтов мишени.

В терминах «долин» и «хребтов» результаты, изображённые на рис.6 можно сформулировать так: в долинах мишень интенсивно передаёт тепло в воду через подложку, а на хребтах мишень принимает тепло от подложки, увеличивая тепловой поток в гелий. Мы предполагаем, что именно поэтому показанный в табл.1 интегральный поток тепла в гелий для ДЛМ и ДАМ столь высок по сравнению с СПМ, где проблема долин и хребтов полностью отсутствует.

Для оценки эффективности концепции ЛНМ обратимся к табл.2, где приведены максимальные значения плотности теплового потока *HF*<sub>max</sub> [MBт/м<sup>2</sup>] в

	СП	М	ДАМ		ДЛ	M	ДЛМ	
					Поток гелия по-		Течение гелия	
		r		r	перек і	гофров	вдоль гофров	
Направление теп- лового потока	Из мишени в гелий	Из подложки в воду	Из мишени в гелий	Из подложка в воду	Из мишени в гелий	Из подложки в воду	Из мишени в гелий	Из подложка в воду
<i>HF</i> <sub>max</sub> , MBт/м <sup>2</sup>	-0.123	-1.81	-0.797	-1.34	-0.242	-1.24	-0.188	-1.30
HF <sub>max</sub> , %	100	100	649.15	74.44	196.86	68.69	152.81	72.09
$t_{\rm max}$ , <sup>O</sup> C	51.27	43.99	41.01	38.48	46.56	43.89	43.61	41.19
k		1		1.34		1.46		1.39

Табл.2. Максимальные значения плотности теплового потока  $HF_{\text{max}}$  [MBT/м<sup>2</sup>] в гелий и воду, а также максимальные температуры  $t_{\text{max}}$  [<sup>O</sup>C] поверхностей мишени и подложки для различных вариантов ЛНМ

гелий и воду, а также максимальные температуры  $t_{max}$  [<sup>O</sup>C] поверхностей мишени и подложки для различных вариантов ЛНМ. Знак минус в строке  $HF_{max}$  [MBt/м<sup>2</sup>] указывает на исходящее направление теплового потока.

Анализ результатов удобнее проводить, пользуясь строкой с относительными величинами, выраженными в процентах по отношению к соответствующим значениям для СПМ. Из приведенных данных видно, что для потока тепла из мишени в гелий для всех ЛНМ происходит значительный рост относительный величины  $HF_{max}$ . Отметим, что благодаря большим значениям  $HF_{max}$ [MBt/m<sup>2</sup>] для всех типов ЛНМ перегрева поверхности их мишеней в гелии фактически не происходит. Этот тезис подтверждается данными строки для  $t_{max}$ .

Приведенные в табл.2 значения максимального теплового потока *HF*<sub>max</sub>[MBт/м<sup>2</sup>] из мишени в гелий носят скорее иллюстративный характер тогда, как подобные значения для потока тепла из подложки в воду имеют определяющее значение для оценки эффективности концепции ЛНМ.

Для максимального значения плотности потока тепла  $HF_{max}$ [MBt/м<sup>2</sup>] из подложки в воду наблюдается иная картина. При переходе от СПМ к ЛНМ эта величина уменьшается, причём значительно. Числа в строке для коэффициента k в таблице показывают во сколько раз происходит указанное уменьшение. Максимальное уменьшение величины  $HF_{max}$ [MBt/м<sup>2</sup>] в 1.46 раз наблюдается для ДЛМ с перекрёстным обтеканием гофров гелием.

Этот результат полезнее сформулировать по-другому: одно и то же значение  $HF_{max}[MBT/m^2]$  в локально-наклонных мишенях будет достигнуто при токах, в k раз больших, чем соответствующий ток в стандартной плоской мишени. Это утверждение справедливо, поскольку в использованной нами расчётной модели нет нелинейных элементов и величина  $HF_{max}[MBT/m^2]$  пропорциональна энерговыделению в мишени. т.е. току пучка протонов.

В табл.2 значения  $HF_{max}$ [Вт/м<sup>2</sup>] приведены для тока 10 мкА, но с учётом отмеченной пропорциональности они легко пересчитываются на любое другое значение тока.

Коэффициент k в табл.2 и есть количественный показатель эффективности локально-наклонных мишеней по сравнению со стандартными плоскими мишенями. Действительно, в системах с водяным охлаждением существует понятие критического теплового потока  $HF_{\rm critical}[{\rm MBt/m^2}]$ , при превышении которого, теплопередача от твёрдого тела в воду резко снижается из-за смены режима кипения воды. Величина критического теплового потока зависит от многих параметров, например, таких, как давление воды и скорость её течения, материал поверхности охлаждения, его состояние и ориентация, наличие в воде специальных присадок и т.д. В числовом выражении значения критического теплового потока для воды варьируются в очень широком диапазоне, например, в работе [14] приводятся значения  $HF_{\rm critical}[{\rm MBt/m^2}]$  от 1.3 MBt/m<sup>2</sup> до 35 MBt/m<sup>2</sup>.

Поскольку в использованной нами расчётной схеме концепция критического теплового потока не заложена, то факт существования этой величины мы учитывали «вручную». О необходимости такого учёта говорит то, что уже при токе пучка 10 мкА достигнутые значения  $HF_{max}$ [MBt/m<sup>2</sup>] для плотности потока тепла в воду попадают в указанный выше диапазон для критических значений  $HF_{critical}$ [MBt/m<sup>2</sup>].

Вычислить реальное значение *HF*<sub>critical</sub>[MBт/м<sup>2</sup>] для конкретной модели, к

сожалению, невозможно. В настоящей работе мы исходим из того, что при каком-то значении тока  $i_{critical}$  величина  $HF_{max}$ [MBT/м<sup>2</sup>] достигнет своего предельного значения  $HF_{critical}$ [MBT/м<sup>2</sup>] и произойдёт срыв всего процесса охлаждения. Это и будет предельно допустимым током облучения. Для нас важно, что при любом конкретном значении  $HF_{critical}$ [MBT/м<sup>2</sup>] ток  $i_{critical}$  для локально-наклонной мишени будет в k раз больше соответствующего тока для стандартной мишени.

Как видно из табл.2, в предложенной модели значение величины k лежит в пределах 1.34–1.46, что достигает 62% от идеального результата – геометрического коэффициента усиления площади  $k_{\rm S} = 2.37$ , и может быть значимо с практической точки зрения.

Итак, максимально допустимый ток *i*critical для локально-наклонной мишени будет в 1.46 раз больше соответствующего тока для стандартной мишени, что и является техническим обоснованием целесообразности их разработки и применения.

#### 3.3. Распределение установившихся температур на мишени и на подложке

Подробные карты распределения температур на поверхностях обеих мишеней со стороны гелия и воды изображены на рис.7 и 8. Неожиданным оказалось распределение температур для ДЛМ: в гелии температура хребтов рельефа у этой мишени выше температуры склонов (рис.7а), а в воде наоборот – горячее своих склонов долины подложки (рис.8а). Естественным следует признать распределение температур для воды, поскольку хребты в ней холоднее склонов из-за того, что они лучше остальных частей рельефа омываются охлаждающим потоком.

Причина того, что в гелии хребты ДЛМ горячее ближайшего окружения вскрыта выше в разделе 3.2. Там на рис.6b показано, что в окрестности хребтов имеется дополнительный теплоприток в мишень со стороны подложки и поток гелия, по-видимому, не справляется с охлаждением хребтов мишени.



Рис.7. Контуры распределения температуры на поверхности мишени со стороны гелия для (а) ДЛМ и (b) СПМ. Для ДЛМ изображён вариант с поперечным обтеканием гофров гелием. На рис.7а гофры мишени расположены вертикально так, что через центр проходит хребет рельефа и он имеет более высокую температуру, чем его ближайшее окружение. Относительно горячие зоны слева и справа от центра вблизи экватора на рис.7а обусловлены застойными зонами в окрестности входа и выхода потока гелия в гелиевую камеру (см. рис.3).



Рис.8. Температура поверхности подложки со стороны воды для (а) ДЛМ и (b) СПМ. Отметим, что на рис.8а проходящий через центр подложки горячий гофр подложки в этой проекции фактически представляет из себя заполненную водой долину – он заглублён в тело подложки, расположен под хребтом мишени и горячее окружения.

Рис.8а необходимо рассматривать одновременно с рис.4а. При этом проявится явная антикорреляция между величиной плотности теплового потока через поверхность подложки в воду – рис.4а и температурой поверхности подложки со стороны воды – рис.8а: на участках подложки с большими значениями плотности теплового потока температура подложки ниже, что довольно естественно. Температура подложки в данной ситуации является величиной производной от теплового потока с её поверхности.

## 4. Заключение

В работе представлена модель локально-наклонной мишени – ЛНМ, с гофрированным рельефом на облучаемой части и рассчитаны её теплофизические характеристики. На примере ЛНМ из спрессованного порошка молибдена с ниобиевой подложкой определены реально достижимые параметры модели, обусловленные свойствами использованных материалов и требованиями совместимости конструкции модели с существующим мишенным модулем Nirta Solid Compact.

Показано, что, хотя идеальный результат для эффективности локальнонаклонной мишени, равный отношению площадей ЛНМ и стандартной мишени, на предложенной модели и не достигается, однако даже достигнутый результат, равный 62% от максимального, может представлять практический интерес. А то, что максимально допустимый ток  $i_{critical}$  для локально-наклонной мишени будет в 1.46 раз будет больше соответствующего предельного тока для стандартной мишени, можно считать техническим обоснованием целесообразности разработки ЛНМ.

Более того, это результат для конкретного варианта ЛНМ, возможно, что он может быть улучшен за счет совершенствования конструкции ЛНМ и более тщательного подбора материалов. В частности, интересно будет распространить предложенный подход на мишени из гофрированной металлической фольги или на плёночные мишени, напиленные на гофрированную подложку. Дополнительный выигрыш от использования гофрированных мишеней может проявиться и на этапе химической постобработки. Эти аспекты требуют специального анализа и выходят за рамки численного моделирования тепловых процессов.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке МОНКС РА в рамках научного проекта № 21Т-2G279.

## ЛИТЕРАТУРА

- 1. Nirta Solid Compact Model TS06 Operating Manual, ELEX COMMERCE, Belgrade, Serbia, 2010.
- 2. https://www.elexcomm.com/product/539d84643beb6ec14b00000d.
- 3. G.S. Harutyunyan. J. Contemp. Phys., 51, 102 (2016).
- 4. K. S. Chun, H. Park, J. Kim. The 13th International Workshop on Targetry and Target Chemistry, 28, Proceedings 005, (2011).
- 5. H. Thisgaard, M. Jensen, D.R. Elema. The 13th International Workshop on Targetry and Target Chemistry Proceedings, Abstract 023, 128 (2011).
- 6. H. Thisgaard, M. Jensen, D.R. Elema. Applied Radiation and Isotopes, 69, 1 (2011).
- 7. S. Spellerberg, B. Scholten, I. Spahn, W. Bolten, M. Holzgreve, H.H. Coenen, S.M. Qaim. Applied Radiation and Isotopes, **104**, 106 (2015).
- R. Dallakyan, N. Dobrovolski, A. Melkonyan, I. Sinenko, A. Manukyan, A. Grigoryan. 18th Workshop on Targetry and Target Chemistry, Abstracts, Whistler, BC, Canada, 54 (2022).
- 9. https://www.ansys.com/products/fluids/ansys-Fluent
- 10. HighPIT Model PI01 ELEX Commerce, https://www.elexcomm.com/prod-uct/539df10c5a2a548b53000007.
- 11. C.P. Kothandaraman, S. Subramanyan. Heat and Mass Transfer Data Book, New Delhi: New Age International (P) Ltd., Publishers, 2007.
- A. Avetisyan, R. Avagyan, I. Kerobyan, R. Dallakyan, G. Harutyunyan, A. Melkonyan. EPJ Web of Conferences 93, 08001 (2015), https://isotope.yerphi.am/ articles/epj-conferences.pdf.
- 13. Web Calculator for determine the residual spectral fluence or residual energy for a particles traversing a shielding material, https://www.sr-niel.org/index.php/sr-niel-web-calculators/web-calculator-for-determine-the-residual-spectral-fluence-for-a-particles-traversing-a-shielding-material.
- 14. Y.A. Cengel. Heat Transfer a Practical Approach. New York: McGraw Hill, 1997.
- 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. Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences), 56, 257 (2021).

## NIRTA SOLID COMPACT ԹԻՐԱԽԱՅԻՆ ՄՈԴՈՒԼԻ ՀԱՄԱՐ ԼՈԿԱԼ ԹԵՔ ԹԻՐԱԽՆԵՐԻ ՀՈՎԱՑՄԱՆ ՊՐՈՑԵՄՆԵՐԻ ԹՎԱՅԻՆ ՄՈԴԵԼԱՎՈՐՈՒՄ

## Ա. ԱՎԵՏԻՍՅԱՆ, Ռ. ԴԱԼԼԱՔՅԱՆ, Ն. ԴՈԲՐՈՎՈԼՍԿԻ, Ա. ԳՐԻԳՈՐՅԱՆ, Ա. ՄԱՆՈՒԿՅԱՆ, Ա. ՄԵԼՔՈՆՅԱՆ, Ի. ՍԻՆԵՆԿՈ

Աշխատանքը նվիրված է բժշկական իզոտոպների արտադրության համար նոր՝ լոկալ թեք տեսակի թիրախների մշակմանը, որոնք կարող են օգտագործվել պրոտոնային մեծ ինտենսիվությամբ փնջերով ձառագայթելիս։ Աշխատանքում ներկայացված են ջերմային պրոցեսների թվային մոդելավորման արդյունքները լոկալ թեք թիրախներում, որոնք պատրաստված են մամլված մոլիբդենի փոշուց՝ նիոբիումե հենարանի վրա Nirta Solid Compact Model TS06 թիրախային մոդուլի համար։ Հաշվարկներն իրականացվել են ANSYS Workbench 18.2 ծրագրի Fluent Flow (Fluent) ինժեներական փաթեթի միջոցով պրոտոնային ձառագայթման գոտում գծային և առանցքային սիմետրիկ ակոսներով թիրախների տարբերակների համար։ Յույց է տրվել, որ օգտագործելով 2.37 անգամ ավելացած հովացման տարածք ունեցող լոկալ թեք թիրախների տարբեր մոդելներ, հնարավոր է հասնել ձառագայթման հոսանքի 1.34–1.46 անգամ աձի՝ համեմատած ստանդարտ հարթ թիրախի։ Կատարվել է թիրախներում ջերմային հոսքերի և ջերմաստիձանների բաշխման վերլուծություն։

## NUMERICAL MODELING OF COOLING PROCESSES OF A LOCALLY INCLINED TARGET WITH A NIRTA SOLID COMPACT TARGET MODULE

# A. AVETISYAN, R. DALLAKYAN, N. DOBROVOLSKI, A. GRIGORYAN, A. MANUKYAN, A. MELKONYAN, I. SINENKO

The work is devoted to the development of locally inclined targets for the production of medical radioisotopes, which can be used for high-intensity proton beam irradiations. The paper presents the results of a numerical analysis of thermal processes in locally inclined targets made of pressed molybdenum powder with a niobium target holder for the Nirta Solid Compact Model TS06 target module. Calculations were carried out using the Fluent Flow (Fluent) engineering package of the ANSYS Workbench 18.2 software platform for variants of targets with linear and axially symmetric grooves in the proton irradiation zone. It has been shown that using various models of locally inclined targets with a cooling area increased by 2.37 times, it is possible to achieve an increase in the irradiation current by 1.34–1.46 times compared to a standard flat target. An analysis of the distribution of heat flows and temperatures in the targets was carried out.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.18–25 (2024) УДК 539.1.074.3 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-18

# ПРОТОТИП ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО КАЛОРИМЕТРА ИЗ ВОЛЬФРАМАТА СВИНЦА

## Г.Г. МКРТЧЯН, Г.О. МАРУКЯН<sup>\*</sup>, А.Г. МКРТЧЯН, А.А. ШАГИНЯН, В.О. ТАДЕВОСЯН, А.В. ВОСКАНЯН, А.Г. МОВСИСЯН, А.Х. ОГМРЦЯН

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

\*e-mail: maruk@yerphi.am

(Поступила в редакцию 5 февраля 2024 г.)

В работе представлены результаты исследований характеристик кристаллов вольфрамата свинца (PbWO<sub>4</sub>). Проведены измерения пропускания света и световыход от прохождения космических мюонов. Средние значения пропускания света кристаллов в поперечном направлении составляют 62.82, 68.38 и 75.68% при длинах волн  $\lambda$  = 360, 420 и 620 нм, а световыход ~16 фэ/МэВ. Спроектирован и построен прототип электромагнитного калориметра из кристаллов, уложенных в матрицу 4 × 4, который протестирован космическими мюонами. Полученные результаты подтверждают выводы других групп коллаборации Электрон-Ионного Коллайдера о том, что качество кристаллов производства СКҮТUR удовлетворяет требованиям, предъявляемым к электромагнитному калориметру, и что они могут быть базой для его создания.

## 1. Введение

Физическая программа Электрон-Ионного Коллайдера (EIC [1]), строительство которого запланировано в Брукхейвенской Национальной Лаборатории, включает наиболее важные и ключевые вопросы, в ответах на которые нуждаются экспериментальные сообщества мира: происхождение спина нуклона, глюонная структура ядер, происхождение адронной массы, и т.д. Чтобы выполнить такую физическую программу, EIC предоставит интенсивный пучок электронов с энергией 18 ГэВ, сталкивающихся с протонами (41–275 ГэВ ) и ядрами (до 166 ГэВ/нуклон) при светимостях порядка  $10^{34}$  см<sup>-2</sup>сек<sup>-1</sup>. Система детекторов EIC должна обеспечить ( $e/\pi$ ) и ( $K/\pi$ ) разделение вплоть до значения импульса 60 ГэВ.

Подробное описание систем идентификации частиц (PID), восстановления траекторий, электромагнитной и адронной калориметрии главного детектора EIC, названный электрон-Протон/Ионный Коллайдер (ePIC), представлено в [2–5]. Выбор варианта, оптимизация и проектирование Электромагнитного Калориметра (EmCal) для ePIC еще находятся в фазе разработок и требуют дополнительных исследований. С этой целью многие группы ePIC коллаборации создают прототипы и проводят независимые тесты и сравнивают результаты.

Особенно важно исследовать характеристики кристаллов и прототипов EmCal, что и является основной целью работ, проведенных в Национальной Научной Лаборатории им. А. И. Алиханяна (ННЛА). Типичный электромагнитный калориметр – это прозрачный, однородный радиатор из кристаллов, с толщиной достаточно большими для полного содержания ливня вторичных частиц. В экспериментах последних десяти лет предпочтительным материалом для калориметра является неорганический сцинтиллятор вольфрамат свинца (PbWO<sub>4</sub>), которому свойственны малый радиус Мольера ( $R_{\rm M} = 2.0$  см), высокая плотность ( $\rho \approx 8.3$  г/см<sup>3</sup>), быстрый отклик (<2 нс) и радиационная стойкость.

Полная конструкция EmCal для ePIC основана на ряде из приблизительно 3000 кристаллов PbWO<sub>4</sub>, размером в 2.0 × 2.0 × 20 см<sup>3</sup>.

Группа ННЛА имеет большой опыт в области калориметрии. Она возглавляла проектирование и строительство электромагнитных калориметров для HMS и SHMS спектрометров экспериментального зала С лаборатории Джефферсона [5–7].

## 2. Отбор кристаллов PbWO<sub>4</sub> для прототипа EmCal

В настоящее время единственными в мире двумя предприятиями с возможностями массового производства кристаллов PbWO<sub>4</sub> являются SICCAS в Китае и CRYTUR в Чешской Республике. CRYTUR и SICCAS произвели по 1000 кристаллов каждый для лаборатории Джефферсона. Характеристики этих кристаллов приведены в [6]. Небольшая партия из 20 кристаллов производства CRYTUR была приобретена ННЛА для исследования их качества и для постройки и тестирования прототипа электромагнитного калориметра.

## 2.1. Общая проверка кристаллов

Образцы кристаллов были прямоугольной формы,  $20.5 \times 20.5 \times 200$  мм<sup>3</sup> номинальных размеров. Продольная (Z) и поперечные (X, Y) размеры кристаллов были измерены высокоточным штангенциркулем (точность лучше, чем 50 мкм) и датчиком Mituito Electric Digital Height Gage (точность 3–5 мкм). Средние размеры кристаллов составляют  $20.47 \times 20.48 \times 200.13$  мм<sup>3</sup>, что соответствует номинальным требованиям, и расходимости не превышают ±50 мкм. После первой, визуальной проверки все кристаллы были проверены цифровым микроскопом DeltaPix. Он обеспечивает сверхвысокое разрешение и все необходимые для точных измерений функции. Исследования показали, что несмотря на некоторые недостатки в виде царапин, все кристаллы были пригодны для дальнейших исследований и тестирования.

### 2.2. Оптическое пропускание

Эффективность пропускания света кристаллов в поперечном направлении (толщина 20 мм) была измерена оптическим фотоспектрометр FLAME-S-XR1 фирмы Ocean Insight. В измерениях применили программное приложение OceanART, которое позволяет одновременно получать данные по поглощению, пропусканию и отражению. Систематические погрешности и воспроизводимость наших результатов были определены многократными измерениями пропускания одного и того же кристалла, в одном и том же положении. Данные показывают, что точность наших измерений лучше, чем 10%. Светопропускание лучщего и худщего кристаллов PbWO<sub>4</sub> в поперечном направлении, измеренное в ННЛА, в сравнении с данными от производителя показано на рис.1.



Рис.1. Светопропускание в поперечном направлении для лучшего и худшего из кристаллов CRYTUR (показаны точками). Стрелками и квадратами показаны длины волн и значения пропускания, представленные фирмой CRYTUR. Пунктирные линии указывают приемлемый для EIC диапазон значений пропускания.

Для исследования оптической однородности кристалла пропускание было измерено в поперечном направлении, при нескольких расстояниях от конца кристалла, от 5 до 195 мм. Средние значения поперечного пропускания кристаллов, измеренных в ННЛА, составляют 62.82, 68.38 и 75.68% при длинах волн  $\lambda = 360$ , 420 и 620 нм, соответственно, и проходят технические требования для калориметра EIC.

## 2.3. Световыход

Световыход (LY) измеряется в количестве фотоэлектронов (фэ), испускаемых на единицу энергетических потерь в кристалле (фэ/МэВ). Световыход был измерен с помощью космических мюонов при их прохождении через кристалл PbWO<sub>4</sub> с толщиной 20.5 мм. Одна из торцевых поверхностей кристалла была соединена с окном фотоумножителя (ФЭУ) оптической смазкой Bicron BC-630. Остальные поверхности были покрыты пленками оптического отражателя ESR и черного Tedlar-а. Измерения световыхода кристалла выполнены с помощью двух разных ФЭУ: Нататаtsu R4125 и Нататаtsu H6533. Измерение LY с помощью R4125 является приоритетным, поскольку мы используем эти ФЭУ в нашем прототипе EmCal. Измерения со вторым умножителем (H6533) выполнены для перекрестной проверки.

Для формирования триггера от космических мюонов использовались два одинаковых сцинтилляционных счетчика, размещенных с двух сторон кристалла на небольшом расстоянии. Активные размеры сцинтиллятора составляли 10.0 × 10.0 × 50.0 мм<sup>3</sup>. Сигналы этих счетчиков, проходя через модуль дискриминатор-формирователь с порогом ~30 мВ, формируют импульсы по стандарту NIM с

длительностью 40 нс. Далее они поступают в логический модуль совпадения (LU N455) и генерируют сигнал «Ворота» (Gate) шириной 150 нс для зарядо-цифрового преобразователя QDC. Анодные сигналы ФЭУ оцифрованы напрямую с помощью зарядо-чувствительного 12-битного интегрирующего аналого-цифрового преобразователя типа CAEN V792N. Более подробную информацию об электронике и системе сбора данных можно найти в разделе 3.

В качестве примера на рис.2 показано распределение зарегистрированных QDC сигналов ФЭУ, соответствующее энергиям, выделяемым космическими мюонами в кристалле PbWO<sub>4</sub>.



Рис.2. Распределение сигналов ФЭУ в каналах QDC, соответствующее энерговыделениям космических мюонов, проходящих через кристалл PbWO<sub>4</sub> толщиной 20.5 мм.

Для определения световыхода кристалла это распределение аппроксимируется функцией Гаусса, находится наиболее вероятное значение  $\bar{A}$ , и из него вычитается компонент пьедестала (PED), соответствующий нулевому сигналу ФЭУ и электроники. Если при данном напряжении ФЭУ в шкале QDC положение одноэлектронного пика (SEP) известно, тогда световыход (LY) можно найти как LY =  $(\bar{A} - \text{PED})/\text{SEP}$ . Световыход на единицу энергии, потерянной частицей в кристалле, определяется как LY/ $E_{dep}$ , где выделенная энергия  $E_{dep} = dE/dx \times \rho \times d$ . Для кристалла PbWO<sub>4</sub> толщиной 2.0 см это будет ~25МэВ.

Если известен коэффициент усиления ФЭУ для данного значения высокого напряжения, то положение SEP в QDC спектре можно рассчитать по соотношению SEP =  $(q_e \times G)/q_0$ , где  $q_e = 1.6 \times 10^{-19}$  Кл – заряд электрона, а  $q_0 = 100$  фКл =  $10^{-13}$  Кл – значение шага шкалы QDC. Например, для ФЭУ H6533 при высоковольтном напряжении 2000 В коэффициент  $G = 2 \times 10^6$ , что даст SEP  $\approx 3$  единицы шкалы QDC.

Если коэффициент усиления ФЭУ неизвестен, значение SEP можно определить посредством измерения светоизлучающего диода (LED). В этом случае амплитудное распределение сигналов ФЭУ измеряется при интенсивности света порядка нескольких сотен фотоэлектронов, а максимум распределения и его ширина σ определяются из аппроксимации функцией Гаусса. Пренебрегая вкладами шумов электроники и других возможных источников, количество зарегистрированных фотоэлектронов  $N_{\rm Pe}$  при заданной интенсивности светодиода можно оценить просто как обратное квадрату нормированной ширины распределения,  $N_{\rm pe} = 1/\sigma_{\rm norm}^2$ , где  $\sigma_{\rm norm} = \sigma/N_{\rm ADC}$ ,  $\sigma$  – ширина гауссовой аппроксимации, а  $N_{\rm ADC}$  – положение максимума амплитудного распределения с вычетом пьедестала.

В наших измерениях SEP определялся вышеупомянутыми двумя методами. Разница в полученных результатах находилась в диапазоне до ~ 20%, а для световыхода кристаллов CRYTUR получено среднее значение ~16 фэ/МэВ.

### 3. Прототип EmCal

Несколько прототипов электромагнитного калориметра для EIC были сконструированы и протестированы коллаборацией ePIC. Мы спроектировали и построили собственный прототип для проведения наших независимых исследований ключевых аспектов калориметрии EIC. На основе результатов визуальной и микроскопической проверки и измерений пропускания мы выбрали 16 лучших кристаллов PbWO<sub>4</sub> для постройки прототипа EmCal.

Прототип калориметра состоит из 16 кристаллов PbWO<sub>4</sub> размерами  $2.05 \times 2.05 \times 20$  см<sup>3</sup>, уложенных в матрицу  $4 \times 4$ . Модули держатся в опорных рамках, отпечатанных с использованием 3D-принт технологии. Таким образом, получился компактный, небольшой калориметр, с минимальными зазорами между кристаллами (<250 мкм).

Для обеспечения световой изоляции все кристаллы индивидуально обернуты в рефлектор ESR толщиной 65 мкм и фольгу Tedlar толщиной 30 мкм. Каждый кристалл соединен с ФЭУ Hamamatsu R4125-01 оптическим вазелином. Матрица кристаллов с фотоумножителями и высоковольтными делителями помещена в темный светоизолированный металлический ящик. На задней торцевой стенке ящика размещены разъемы высоковольтного питания и выходных сигналов ФЭУ. При тестировании прототипа космическими мюонами мы использовали те же триггерные счетчики, ту же электронику и систему сбора данных, что и в измерениях светового выхода кристаллов.

Диаграмма схемы электроники и системы сбора данных, использованных в исследованиях с космическими лучами, показана на рис.3.



Рис.3. Диаграмма схемы электроники и системы сбора данных, использованных в исследованиях с космическими лучами. С1 и С2 – сцинтилляционные счетчики, CFD – дискриминатор, Logic Unit – модуль совпадения, Gate – сигнал Ворота, QDC – зарядо-цифровой преобразователь, Delay – линия задержки.

В данном случае необходимо было обеспечить питание высокого напряжения для всех 16-и ФЭУ и анализировать все 16 сигналов от QDC.

Для получения полного числа фотоэлектронов, произведенных мюонами во всех четырех слоях калориметра, необходимо знать значение одноэлектронного сигнала (SEP) каждого ФЭУ. Для определения положения сигнала SEP всех ФЭУ в собранном прототипе мы использовали метод калибровки с помощью свтодиодов (LED). Распределения полного числа фотоэлектронов, произведенных мюонами в прототипе, выведенного посредством такой калибровки, показаны на рис.4.



Рис.4. Распределения полного числа фотоэлектронов, произведенных космическими мюонами в 4-х колонках прототипа.

С учетом того, что мюоны, проходящие через все четыре кристалла, теряют в сумме энергию приблизительно в 100 МэВ (~25 МэВ в каждом блоке), для световыхода в кристалле PbWO<sub>4</sub> получим ~16 фэ/МэВ (с учетом частичного покрытия торца кристалла фотокатодом ФЭУ), что подтверждает данные, полученные по измерениям световыхода кристаллов.

### 4. Заключение

В ННЛА нами исследовано качество кристаллов PbWO<sub>4</sub> производства CRYTUR. Кристаллы визуально проверены, измерены их размеры, и измерен световыход от прохождения космических мюонов через кристалл. Измерения показали, что средние значения поперечного светопропускания кристаллов составляют 62.82, 68.38 и 75.68% при длинах волн  $\lambda = 360$ , 420 и 620 нм. Кристаллы имеют средний световыход ~16 фэ/МэВ со стандартным отклонением 0.9 фэ/МэВ, что находится в пределах погрешности измерений. Световыход кристалла в двух разных точках, находящихся на расстоянии ~14 см друг от друга, практически одинаков (в пределах 3–5%), что свидетельствует о хорошей оптической однородности. Был создан прототип EmCal, состоящий из 16 кристаллов PbWO<sub>4</sub>, уложенных в матрицу 4 × 4. Прототип был протестирован космическими мюонами. Мюоны, проходя все четыре слоя калориметра, теряют в сумме энергию ~100 МэВ (~25 МэВ в каждом блоке). В результате они генерируют ~700-800 фотоэлектронов, что составляет ~7-8 фэ/МэВ. Это значение почти в два раза меньше измеренной величины световыхода PbWO<sub>4</sub> из-за частичного покрытия фотокатодом ФЭУ R4125 торцевой поверхности кристалла [5].

Для окончательного выбора конструкции калориметра EIC важным является сопоставление и совместное рассмотрение результатов исследований различных групп EmCal коллаборации EIC и выработка общих требований к характеристикам кристаллов и конструкции калориметра. С этой точки зрения, данные, полученные ННЛА являются неотъемлемой частью базовых данных и представляют общий интерес.

Полученные нами результаты подтверждают выводы других груп EIC коллаборации, что качество кристаллов производства CRYTUR удовлетворяет всем требованиям, предъявляемым к электромагнитному калориметру, и могут быть базой для создания EmCal [5].

Мы благодарим сотрудников экспериментального зала С Лаборатории Джефферсона и группу из Католического Университета Америки (CUA) за помощь и техническую поддержку на различных этапах работы.

В особенности мы благодарны Р. Лусинянцу и американскому благотворительному фонду PIERIS за помощь, оказанную ННЛА. Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке PA, в рамках научного проекта No 21AG-1C028.

## ЛИТЕРАТУРА

- R.A. Khalek, A. Accardi, J. Adam, D. Adamiak, W. Akers, et al., Nucl. Phys. A, 1026, 122447 (2022).
- 2. J. Adam, L. Adamczyk, N. Agrawal, C. Aidala, W. Akers, et al., JINST, 17 (10), P10019 (2022).
- 3. J.K. Adkins, Y. Akiba, A. Albataineh, M. Amaryan, I.C. Arsene et al., e-Print: 2209.02580 [physics.ins-det].
- R. Alarcon, M. Baker, V. Baturin, P. Brindza, S. Bueltmann et al., e-Print: 2209.00496 [physics.ins-det].
- 5. F. Bock, N. Schmidt, P.K. Wang, N. Santiesteban, T. Horn et al., Nucl. Instr. and Meth. A, 1013, 165683 (2021).
- T. Horn, V.V. Berdnikov, S. Ali, A. Asaturyan, M. Carmignotto et al., Nucl. Instr. and Meth. A, 956, 163375 (2020).
- 7. H. Mkrtchyan, R. Carlini, V. Tadevosyan, J. Arrington, A. Asaturyan et al., Nucl. Instr. and Meth. A, 719, 85 (2013).
- 8. R.Y. Zhu, D.A. Ma, H.B. Newman, C.L. Woody, J.A. Kierstead et al., Nucl. Instr. Meth. A, **376**, 319 (1996).

## էԼԵԿՏՐԱՄԱԳՆԻՍԱԿԱՆ ԿԱԼՈՐԻՄԵՏՐԻ ՆԱԽԱՏԻՊ՝ ԿԱՌՈՒՑՎԱԾ ԿԱՊԱՐԻ ՎՈԼՖՐԱՄԱՏԻՑ

# Հ. ՄԿՐՏՉՅԱՆ, Հ. ՄԱՐՈԻՔՅԱՆ, Ա. ՄԿՐՏՉՅԱՆ, Ա. ՇԱՀԻՆՅԱՆ, Վ. ԹԱԴԵՎՈՍՅԱՆ, Հ. ՈՍԿԱՆՅԱՆ, Ա. ՄՈՎՍԻՍՅԱՆ, Ա. ՀՈՂՄՐՑՅԱՆ

Հոդվածում ներկայացված են կապարի վոլֆրամատի (PbWO<sub>4</sub>) բյուրեղների բնութագրերի ուսումնասիրության արդյունքները։ Կատարվել են լույսի թափանցելիության չափումներ և տիեզերական մյուոնների անցումից առաջացած լույսի ելքի չափումներ։ Բյուրեղներում լույսի թափանցելիության միջին արժեքները լայնակի ուղղությամբ կազմում են 62.82, 68.38 և 75.68%  $\lambda = 360, 420$  և 620 ևմ ալիքի երկարություններում, իսկ լույսի ելքը ~16 ֆէ/ՄէՎ է։ Նախագծվել և կառուցվել է բյուրեղների 4 × 4 մատրիցով դասավորված կալորիմետրի նախատիպ, որը փորձարկվել է տիեզերական մյուոնների օգնությամբ։ Ստացված արդյունքները հաստատում են էլեկտրոն-Իոնային Կոլայդերի համագործակցության այլ խմբերի եզրակացությունները առ այն, որ CRYTUR-ի կողմից արտադրված բյուրեղների որակը համապատասխանում է էլեկտրամագնիսական կալորիմետրի պահանջներին, և որ դրանք կարող են հիմք հանդիսանալ այն ստեղծելու համար։

## A PROTOTYPE OF ELECTROMAGNETIC CALORIMETER CONSTRUCTED OF LEAD TUNGSTATE

# H. MKRTCHYAN, H. MARUKYAN, A. MKRTCHYAN, A. SHAHINYAN, V. TADEVOSYAN, H. VOSKANYAN, A. MOVSISYAN, A. HOGHMRTSYAN

The article presents the results of studies of the characteristics of lead tungstate crystals (PbWO<sub>4</sub>). Measurements of light transmission and light output from the passage of cosmic muons were carried out. The average light transmittance of crystals in the transverse direction is 62.82, 68.38 and 75.68% at wavelengths  $\lambda = 360$ , 420 and 620 nm, and the light output is ~16 pe/MeV. A prototype of electromagnetic calorimeter was designed and built from crystals arranged in 4 × 4 matrix which has been tested by cosmic muons. The results obtained confirm conclusions of other groups in the Electron-Ion Collider collaboration that quality of the crystals produced by CRYTUR meets requirements for the electromagnetic calorimeter, and that they can serve as basis for its construction.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.26–34 (2024) УДК 539.172.12 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-26

# ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ПРОИЗВОДСТВА МЕДИЦИНСКОГО ИЗОТОПА <sup>155</sup>ТЬ НА ЦИКЛОТРОНЕ C18/18

## Р.В. АВЕТИСЯН, А.Г. БАРСЕГЯН, Ю.А. ГАРИБЯН, А.В. ГЮРДЖИНЯН, И.А. КЕРОБЯН, А.А. МКРТЧЯН<sup>\*</sup>, А.Ю. ПЕТРОСЯН

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

\*e-mail: haykuhi.mkrtchyan@yerphi.am

(Поступила в редакцию 16 февраля 2024 г.)

Представлены результаты исследований возможности производства изотопа <sup>155</sup>Tb, используемого в диагностике и терапии онкологических заболеваний на протонном пучке медицинского циклотрона C18/18. Измерения наведенной активности были выполнены активационным методом с последующим спектрометрическим анализом. В качестве основной мишени использовался природный гадолиний. Для реакций <sup>nat</sup>Gd(p,xn)<sup>155</sup>Tb были выполнены вычисления функций возбуждения посредством теоретических ядерных кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2. Измеренные значения поперечных сечений были сравнены как с результатами теоретических вычислений, так и с экспериментальными данными других работ. Полученное в ходе эксперимента значение интегральной активности радионуклида <sup>155</sup>Tb было сравнено с результатом, полученным с использованием кода TALYS 1.96, а также с опубликованными данными.

### 1. Введение

Однофотонная эмиссионная компьютерная томография (ОФЭКТ–SPECT) представляет собой мощное средство для диагностики и мониторинга злокачественных образований, дополняющее другие методы создания изображений, такие как КТ (компьютерная томография) и МРТ (магнитно-резонансная томография). Она позволяет получать информацию о функциональных характеристиках и метаболизме опухолей, что играет важную роль в оптимизации лечения и улучшении результатов у пациентов.

ОФЭКТ остается основной методикой в клинической онкологии, несмотря на то, что позитронная эмиссионная томография (ПЭТ–РЕТ) предоставляет более высокую чувствительность и разрешение [1]. Это обусловлено относительно низкой стоимостью оборудования для ОФЭКТ по сравнению с ПЭТ-сканерами, а также простотой и доступностью широко используемых радионуклидов, излучающих γ-кванты [1, 2].

Изотоп <sup>155</sup>Tb (период полураспада  $T_{1/2} = 5.3$  дня) является долгоживущим аналогом технеция <sup>99m</sup>Tc (период полураспада  $T_{1/2} = 6.0067$  ч), благодаря чему применим в ОФЭКТ. В процессе распада, излучая четыре основных  $\gamma$ -кванта с энергиями 86.5 кэВ (I = 32.0%), 105.3 кэВ (I = 25%), 180.1 кэВ (I = 7.45%) и 262.3 кэВ (I = 5.29%), он превращается в стабильный <sup>155</sup>Gd. Эти излучения можно легко обнаружить при использовании метода  $\gamma$ -спектроскопии.

Вместе с тем, высокая вероятность излучения Оже-электронов (119%) [3], открывает новые возможности для его потенциального применения в терапии. <sup>155</sup>Tb излучает конверсионные и Оже-электроны с низкой энергией, в среднем 2 электрона (с энергией выше 4 кэВ) за распад. И с этой точки зрения <sup>155</sup>Tb рассматривается как перспективный радионуклид [4].

В связи с этим, было проведено множество исследований, направленных на создание тераностического изотопа <sup>155</sup>Tb с использованием различных каналов реакций. Эти реакции включают в себя облучение изотопов гадолиния протонами [5–7] и дейтронами [8–10], а также облучение альфа-частицами [7, 11, 12] изотопов европия, природного гадолиния [13, 14] и диспрозия [15]. Кроме того, существуют косвенные методы получения <sup>155</sup>Tb с использованием облучения протонами высоких энергий изотопов <sup>159</sup>Tb [6] или диспрозия [16, 17], что приводит к образованию <sup>155</sup>Ho или <sup>155</sup>Dy, продуктами распада которых является <sup>155</sup>Tb. Во всех этих случаях после химического разделения можно достичь низкого уровня радиоактивных примесей, однако доступность дейтронных- и альфа-пучков ограничена, что делает эти процессы непригодными для запуска клинических испытаний.

Один из наиболее простых и эффективных способов получения нуклида <sup>155</sup>Tb для медицинских целей заключается в использовании peakции <sup>155</sup>Gd(p,n).

Ранее была опубликована работа [18] по исследованию функций возбуждения протон-индуцированных реакций на природном гадолинии посредством различных моделей кодов TALYS 1.96 [19] и EMPIRE 3.2 [20] и проведено сравнение с данными работ [21–25].

Целью настоящего исследования является оценка возможности получения тераностического нуклида <sup>155</sup>Tb посредством ядерных реакций <sup>nat</sup>Gd(p,xn) при использовании выведенного протонного пучка медицинского циклотрона C18/18, расположенного на территории Национальной Научной Лаборатории им. А.И. Алиханяна (ННЛА, Ереванский Физический Институт).

## 2. Экспериментальная методика и техника

Для оценки эффективности метода производства <sup>155</sup>Tb в форме без носителя была измерена функция возбуждения <sup>nat</sup>Gd(p,xn)<sup>155</sup>Tb в области энергии протонов от порога реакции до 18 МэВ. Для достижения этой цели был использован активационный метод стопок. Толщина стопки определяется из условия полной остановки протонов в мишени. Стопка состояла из 11 чередующихся комплектов фольг. Каждый комплект включал в себя в роли основной мишени фольгу из натурального гадолиния Gd (толщина 25.4 мкм, чистота 99.9%), из натуральной меди Cu (20 мкм, 97.96%) в роли монитора протонного пучка и алюминиевую фольгу Al (50 мкм, 98.24%) в роли замедлителя пучка.

Схематический вид стопки представлен на рис.1. Пластина из титана Ті толщиной 50 мкм представляет собой технологическое окно, предназначенное для изоляции вакуума пучкопровода от окружающей среды.

Натуральный гадолиний состоит из семи изотопов ( $^{152}$ Gd – 0.2%,  $^{154}$ Gd – 2.18%,  $^{155}$ Gd – 14.8%,  $^{156}$ Gd – 20.47%,  $^{157}$ Gd – 15.65%,  $^{158}$ Gd – 24.84%,  $^{160}$ Gd – 21.86%), из которых образование нуклида  $^{155}$ Tb при энергии пучка протонов 18 МэВ возможно только на изотопах  $^{155}$ Gd и  $^{156}$ Gd.



Табл.1 содержит информацию относительно порогов реакций и распадных характеристик нуклидов, образованных в результате реакций облучения изучаемой мишени и монитора. Распадные характеристики нуклидов взяты из базы NuDat 3 [3].

Нуклиды	Канал реакции	Порог реакции, МэВ	Период полураспада <i>T</i> <sub>1/2</sub>	Тип распада	Е <sub>ү</sub> , кэВ	<i>Ι</i> γ, %
<sup>155</sup> Tb	<sup>154</sup> Gd (p,γ) <sup>155</sup> Gd (p,n) <sup>156</sup> Gd (p,2n)	4.83 1.61 10.2	5.32 дня	β+(100%)	86.5 105.31 180.08 262.3	32 25.1 7.5 5.29
<sup>63</sup> Zn	<sup>nat</sup> Cu(p,xn)	4.21	38.47 мин	β+(100%)	669.62 962.06	8.2 6.5

Табл.1. Пороги реакций и распадные характеристики образованных нуклидов

Энергетическое распределение протонов в каждой фольге было определено методом Монте-Карло посредством программного пакета SRIM/TRIM [26].

Стопка, состоящая из чередующихся фольг гадолиния, меди и алюминия, была облучена в течение 10 минут на выведенном пучке циклотрона C18/18 с энергией протонов 18 МэВ и током пучка 1 мкА. Через час после облучения стопка была разобрана. Спектрометрические измерения каждой из фольг основной Gd и мониторной Cu мишеней проводились с использованием высокочувствительного германиевого детектора HPGe компании CANBERRA. Последующий анализ спектров был выполнен посредством программы GENIE 2000 [27].

Для определения эффективности детектора использовались стандартные источники, излучавшие следующие γ-линии: 86.5 кэВ (<sup>155</sup>Eu), 105.3 кэВ (<sup>155</sup>Eu), 122.06 кэВ (<sup>57</sup>Co), 136.47 кэВ (<sup>57</sup>Co), 511 кэВ (<sup>22</sup>Na) и 1274.6 кэВ (<sup>22</sup>Na). Эффективность детектора оценивалась путем измерений при различных расстояниях между детектором и источниками в интервале от 0 до 50 см.

Поперечное сечение реакции на *i*-ом образце в стопке для реакции  $^{nat}Gd(p,xn)^{155}$ Tb было вычислено с использованием известной формулы [28]:

$$\sigma = \frac{\lambda CA}{\varepsilon l_{\gamma} N_A l_{\rho} \Phi_i (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_c} (1 - e^{-\lambda t_m})}$$
(1)

где  $\lambda$  – постоянная распада,  $\lambda = \ln 2/T_{1/2} (\mathbf{u}^{-1})$ ; C – число событий под фотопиком; A – атомный номер ядра мишени;  $\varepsilon$  – эффективность детектора при данной  $\gamma$ -линии;  $I_{\gamma}$  – интенсивность излученной  $\gamma$ -линии;  $N_A$  – число Авогадро (6.02214 ×  $10^{23}$  г/моль); l – толщина мишени (см);  $\rho$  – плотность вещества мишени (г/см<sup>3</sup>);  $\Phi_i$  – интенсивность протонов в *i*-ом образце (частиц/ч);  $t_i$  – длительность облучения (ч);  $t_c$  – время от конца облучения до начала измерения (ч);  $t_m$  – время измерения (ч).

Интенсивность протонного пучка  $\Phi_i$  для каждой энергии определялась посредством мониторной фольги из меди, предшествующей *i*-ой фольге гадолиния. В качестве мониторной рассматривалась реакция <sup>nat</sup>Cu(p,x)<sup>63</sup>Zn, для которой рекомендованные со стороны МАГАТЭ значения сечений были взяты из [29]. Таким образом, интенсивность протонного пучка определяется по формуле:

$$\Phi_i = \frac{\lambda CA}{\varepsilon I_{\gamma} N_A l \rho \sigma (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_c} (1 - e^{-\lambda t_m})}.$$
(2)

Обозначения те же, что и в формуле (1). Принимая во внимание малую толщину мишеней Gd и Cu, полагаем, что поток протонов от мониторной фольги из меди к последующей фольге с гадолинием остается неизменным. Правомочность использования в качестве мониторной реакции <sup>nat</sup>Cu(p,x)<sup>63</sup>Zn во всем диапазоне исследуемой области энергий протонов обусловлена тем, что на последней по направлению движения пучка фольге Cu значение энергии протонов (4.56±0.85) МэВ, вычисленное посредством пакета SRIM/TRIM [26], выше порога реакции (см. табл.1).

## 3. Анализ результатов

Теоретические вычисления поперечного сечения реакций образования радионуклида <sup>155</sup>Tb на мишени из натурального гадолиния в диапазоне энергий протонов от порога до 18 МэВ были выполнены с использованием ядерных кодов TALYS 1.96 [19] и EMPIRE 3.2 [20] в версии по умолчанию.

На рис.2 для реакции <sup>nat</sup>Gd(p,xn)<sup>155</sup>Tb приведены измеренная функция возбуждения совместно с данными [3, 23] и с теоретическими вычислениями посредством кодов TALYS 1.96 [19] и EMPIRE 3.2 [20]. Как видно из рис.2, измеренные функции возбуждения согласуются с данными работ [21, 23]. В диапазоне энергий протонов выше 10 МэВ экспериментальные данные несколько ниже теоретических предсказаний обеих кодов.

Радионуклидная активность для тонкой мишени определяется известным соотношением (3) [30]:

$$A^{\text{EOB}} = \frac{I\rho N_A \sigma l}{Aze} \left( 1 - e^{-\lambda t_b} \right), \tag{3}$$

где  $A^{\text{EOB}}$  активность непосредственно после конца облучения, (End Of Bombardment); I – ток пучка протонов (A);  $\sigma$  – измеренное поперечное сечение (см<sup>2</sup>);  $t_b$  – длительность облучения (ч); z – заряд падающей частицы; e – заряд электрона (1.602177 × 10<sup>-19</sup> Кл).

Численные значения измеренных сечений, а также активности для каждой энергии протонов приведены в табл.2.



Рис.2. Измеренная функция возбуждения для реакции <sup>nat</sup>Gd(p,xn)<sup>155</sup>Tb совместно с данными [21, 23] и теоретическими вычислениями с использованием кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2.

Для оценки вклада изотопов <sup>155</sup>Gd и <sup>156</sup>Gd в процесс образования нуклида <sup>155</sup>Tb посредством программных кодов TALYS 1.96 [19] и EMPIRE 3.2 [20] были проведены вычисления сечения реакций, учитывая природную распространенность каждого изотопа. Результаты вычислений показали, что в области энергии протонов от порога до 10.2 МэВ образование <sup>155</sup>Tb происходит через канал (p,n). В области с энергией выше 10.2 МэВ основной вклад в образование изотопа <sup>155</sup>Tb

Энергия протонов, МэВ	Сечение, мб	Активность, мКи/(мкА×ч)
3.77±0.80	1.05±0.12	4.99×10 <sup>-4</sup>
6.05±0.69	2.64±0.30	1.25×10-3
7.83±0.63	6.75±0.77	3.21×10 <sup>-3</sup>
9.35±0.57	69.57±7.86	3.31×10 <sup>-2</sup>
10.69±0.57	112.23±12.63	5.33×10 <sup>-2</sup>
11.94±0.44	141.16±15.81	6.71×10 <sup>-2</sup>
13.07±0.53	136.15±15.18	6.47×10 <sup>-2</sup>
14.16±0.41	145.23±16.12	6.90×10 <sup>-2</sup>
15.16±0.50	151.34±16.72	7.14×10 <sup>-2</sup>
16.14±0.39	139.23±15.32	6.61×10 <sup>-2</sup>
17.06±0.38	132.71±14.53	6.30×10 <sup>-2</sup>

Табл.2. Измеренные поперечные сечения и активности для тонкой мишени реакции  $^{nat}Gd(p,xn)^{155}Tb$ 

вносит реакция <sup>156</sup>Gd(p,2n), что заметно на рис.2, где при этой энергии наблюдается резкий рост сечения.

С точки зрения использования радионуклида <sup>155</sup>Tb в медицине представляет интерес удельная активность и радионуклидная чистота его образования. Поэтому для получения большей активности рассмотрено использование обогащенных мишеней <sup>156</sup>Gd и <sup>155</sup>Gd.

Получение <sup>155</sup>Tb на мишени из обогащенного <sup>156</sup>Gd не представляется перспективным, так как несмотря на высокие значения сечения образования <sup>155</sup>Tb в реакции <sup>156</sup>Gd(p,2n) с порогом 10.2 МэВ, этот процесс сопровождается реакцией <sup>156</sup>Gd(p,n) с порогом 3.24 МэВ. Это приводит к образованию излучающих интенсивные жесткие  $\gamma$ -кванты сопутствующих нуклидов <sup>156</sup>gTb, <sup>156m1</sup>Tb, <sup>156m2</sup>Tb с периодами полураспадов 5.35 д, 22.4 ч и 5.3 ч, соответственно.

Оценка интегральной радионуклидной активности образованного <sup>155</sup>Tb для толстой мишени (TTY – Thick Target Yield) выполнена посредством численного интегрирования соотношения (4) [31]:

$$TTY(E) = \frac{N_A \lambda}{Aze} \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \frac{\sigma(E)}{dE/dx(E)} dE,$$
(4)

где  $E_{\text{max}}$  и  $E_{\text{min}}$  – максимальная и минимальная энергии налетающей частицы;  $\sigma(E)$  – экспериментально измеренные значения сечений; dE/dx – ионизационные потери налетающей частицы в облученном материале.

Интегральная активность образования нуклида <sup>155</sup>Tb на обогащенном гадолинии <sup>155</sup>Gd в диапазоне энергий протонов до 10.8 МэВ представлена на рис.3 совместно с результатами теоретических вычислений посредством кода TALYS 1.96 [19] и данными работы [21]. Наблюдается хорошее согласие между теоретическими и экспериментальными результатами.

Радионуклид <sup>155</sup>Tb в наиболее чистом виде может быть получен при использовании протонного пучка и обогащенной мишени <sup>155</sup>Gd посредством реакции



Рис.3. Сравнение измеренной интегральной активности на обогащенной мишени <sup>155</sup>Gd совместно с результатами работы [21] и теоретического вычисления по коду TALYS 1.96.
<sup>155</sup>Gd(p,n) (энергетический порог 1.6 МэВ). Как показали вычисления посредством кода TALYS 1.96 [19], образование сопутствующего <sup>156</sup>Tb через канал реакции <sup>155</sup>Gd(p, $\gamma$ ) незначительно из-за малого сечения (порядка 0.1 мб). При энергии протонов выше 10.8 МэВ происходит реакция <sup>155</sup>Gd(p,2n) с образованием <sup>154</sup>Tb. Таким образом, использование обогащенной мишени <sup>155</sup>Gd и протонов с энергией ниже 10.8 МэВ потенциально обеспечивает значительные выходы <sup>155</sup>Tb с высокой радионуклидной чистотой. При таком ограничении энергии протонов для интегральной активности получено значение 0.12 мКи/(мкА×ч), что согласуется с расчетной оценкой 0.15 мКи/(мкА×ч), представленной в работе [21].

## 4. Радионуклидная чистота

Метод отделения изотопа <sup>155</sup>Tb от гадолиниевой мишени и других примесей был разработан в CERN с помощью стендовых экспериментов и описан в работе [27]. По результатам стендовых экспериментов была разработана, создана и внедрена система химического разделения в горячей камере. Эта система позволяет обрабатывать высокие активности радионуклида и при этом снижать дозу радиации, которой подвергается оператор.

Представленные в работе [32] исследования продемонстрировали, что хотя реакция  $^{156}$ Gd(p,2n) $^{155}$ Tb обеспечивает более высокие выходы, однако значительно уступает по радионуклидной чистоте по сравнению с конечным продуктом ядерной реакции  $^{155}$ Gd(p,n) $^{155}$ Tb.

#### 5. Заключение

Была измерена функция возбуждения реакции  $^{nat}Gd(p,n)^{155}Tb$  в области энергии протонов от порога до 18 МэВ. Полученные значения сравнены как с результатами теоретических вычислений посредством кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2, так и с данными других научных центров.

Обсуждена перспектива производства тераностического изотопа <sup>155</sup>Tb на выведенном протонном пучке медицинского циклотрона C18/18, обсуждены условия его производства. Установлено, что высокой активности радионуклида <sup>155</sup>Tb можно достичь через реакцию (p,n) путем облучения протонами высокообогащенных мишеней <sup>155</sup>Gd. Однако для обеспечения радионуклидной чистоты конечного продукта важно, чтобы энергия протонов не превышала пороговое значение для реакции (p,2n), равное 10.8 МэВ. При соблюдении этих условий интегральная активность от толстой гадолиниевой мишени составляет 0.12 мКи/(мкА×ч).

Авторы выражают благодарность обслуживающему персоналу циклотрона C18/18 за обеспечение стабильным пучком при облучении мишеней, а также коллективу Отделения по исследованию и производству изотопов Национальной научной лаборатории имени А.И. Алиханяна за оказанную помощь.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке МОНКС РА в рамках научных проектов № 20TTSG-1C006 и № 23AA-1C014.

## ЛИТЕРАТУРА

- 1. R.J. Hicks, M.S. Hofman. Nat. Rev. Clin. Oncol., 712, 9 (2012).
- 2. G. Lucignani. Q.J. Nucl. Med. Mol. Imaging, 117, 9 (2005).
- 3. National Nuclear Data Center (NNDC), https://www.nndc.bnl.gov/nudat3/
- C. Müller, E. Fischer, M. Behe, U. Köster et al. Nucl. Med. Biol. B Beam Interact with Mater. Atoms, 41, 58 (2014).
- 5. G. Dellepiane, P. Casolaro, A. Gottstein et al. Applied Radiation and Isotopes, 200, 110969 (2023).
- G.F. Steyn et al. Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact with Mater. Atoms, 319, 128 (2014).
- 7. П.П. Дмитриев, Г.А. Молин, З.П. Дмитриева. Атомная энергия, 66, 419 (1989).
- 8. F. Tárkányi et al. Appl. Radiat. Isot., 83, 25 (2014).
- 9. F. Szelecsényi et al. J. Radioanal. Nucl. Chem., 307, 1877 (2016).
- 10. C. Duchemin et al. Appl. Radiat. Isot., 118, 281 (2016).
- 11. G. Gyürky et al. J. G Phys. Nucl. Part. Phys., 37, 115201 (2010).
- 12. A.G. Kazakov et al. Radiochim. Acta., 106, 135 (2018).
- 13. R.E. Gayosoet et al. Radiochim. Acta., 72, 55 (1996).
- D. Ichinkhorloo et al. Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact with Mater. Atoms, 499, 46 (2021).
- 15. R.E. Gayosoet et al. J. Radioanal. Nucl. Chem., 218, 223 (1997).
- 16. F. Tárkányi et al. Ann. Nucl. Energy, 62, 375 (2013).
- 17. F. Tárkányi et al. Appl. Radiat. Isot., 98, 87 (2015).
- 18. H.A. Mkrtchyan. J. Contemp. Phys., 58, 105 (2023).
- 19. A. Koning, S. Hilaire, S. Goriely. TALYS-1.96/2.0. Simulation of nuclear reactions, December 30, 2021, https://tendl.web.psi.ch/tendl\_2021/talys.html.
- M. Herman, R. Capote, M. Sin, A. Trkov et al. EMPIRE-3.2 Malta modular system for nuclear reaction calculations and nuclear data evaluation, August 12, 2013, http://www.nndc.bnl.gov/empire/main.html.
- C. Vermeulen, G.F. Steyn, F. Szelecsenyi et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 275, 24 (2012).
- 22. R. Formento-Cavaier, F. Haddad, C. Alliot et al. Nuclear Inst. And Methods in Physics Research B, 478, 174 (2020).
- G. Dellepiane, P. Casolaro, Ch. Favarettoet et al. Applied Radiation and Isotopes, 184, 110175 (2022).
- 24. R.K. Chapman, A.S. Voyles, N. Gharibyan et al. Applied Radiation and Isotopes, 171, 109647 (2021).
- 25. C. Birattari, E. Gadioli, E. Gadioli-Erba et al. Nuclear Physics A, 201, 579 (1973).
- 26. J.F. Ziegler et al. The Stopping and Range of Ions in Matter (2010) www.srim.org.
- 27. GENIE-2000 Basic Spectroscopy S500, https://genie-2000-basic-spectroscopys500.software.informer.com.
- K. Kim, M.U., Khandaker, et al., Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B, Beam Interact with Mater. Atoms, 322, 63 (2014).
- 29. A., Hermanne, et al. Nuclear Data Sheets, 148, 338 (2018), https://www-

nds.iaea.org/medical/monitor\_reactions.html.

- 30. O. Lebeda, M. Pruszynski, Applied Radiation and Isotopes, 68, 23 (2010).
- 31. M. Sitarz, E. Nigron, A. Guertin et al. MDPI (Multidisciplinary Digital Publishing Institute) Instruments, 3, 7 (2019).
- 32. C. Favaretto, Z. Talip, F. Borgna et al. EJNMMI Radiopharm. Chem., 6, 37 (2021)

## ծԻԿԼՈՏՐՈՆ C18/18-Ի ՎՐԱ <sup>155</sup>ፐԵ ԲԺՇԿԱԿԱՆ ԻՉՈՏՈՊԻ ԱՐՏԱԴՐՈՒԹՅԱՆ ՀՆԱՐԱՎՈՐՈՒԹՅԱՆ ՈՒՍՈՒՄՆԱՍԻՐՈՒԹՅՈՒՆԸ

## Ռ.Վ. ԱՎԵՏԻՍՅԱՆ, Ա.Գ. ԲԱՐՍԵՂՅԱՆ, ՅՈՒ.Հ. ՂԱՐԻԲՅԱՆ, Ա.Վ. ԳՅՈՒՐՋԻՆՅԱՆ, Ի.Ա. ՔԵՐՈԲՅԱՆ, Հ.Ա. ՄԿՐՏՉՅԱՆ, Ա.ՅՈՒ. ՊԵՏՐՈՍՅԱՆ

Աշխատանքում ներկայացված է օնկոլոգիական հիվանդությունների ախտորոշման և բուժման համար օգտագործվող <sup>155</sup>Tb բժշկական իզոտոպի արտադրության ուսումնասիրության արդյունքները՝ ցիկլոտրոն C18/18-ի պրոտոնային փնջի միջոցով։ Հարուցված ակտիվության չափումները կատարվել են ակտիվացիոն անալիզի մեթոդով, որին հաջորդել է սպեկտրաչափական անալիզը։ Որպես հիմնական թիրախ օգտագործվել է բնական գադոլինիումը։ Կատարվել է գրգոման ֆունկցիաների տեսական հաշվարկներ <sup>ոու</sup>Gd(p,xn)<sup>155</sup>Tb ռեակցիաների համար՝ օգտագործելով TALYS 1.96 և EMPIRE 3.2 ծրագրային փաթեթները։ Ստացված արդյունքները համեմատվել են տեսական հաշվարկների, ինչպես նաև այլ, մինչ այժմ հայտնի, փորձարարական արդյունքների հետ։ Գիտափորձի արդյունքում ստացված <sup>155</sup>Tb ռադիոնուկլիդ իինտեգրալ ակտիվությունը համեմատվել է TALYS 1.96 կոդով հաշված տեսական արդյունքի և այլ փորձարարական տվյալների հետ։

# INVESTIGATION OF PRODUCTION POSSIBILITY OF MEDICAL ISOTOPE <sup>155</sup>Tb ON CYCLOTRON C18/18

# R.V. AVETISYAN, A.G. BARSEGHYAN, YU.H. GHARIBYAN, A. V. GYURJINYAN, I.A. KEROBYAN, H.A. MKRTCHYAN, A.YU. PETROSYAN

The results of studies on the production of the <sup>155</sup>Tb isotope, which is used in theranostic applications for oncological diseases, utilizing the proton beam of the medical cyclotron C18/18 are presented. The measurements of the induced activity were carried out using the activation method, followed by spectrometric analysis. Natural gadolinium was used as the main target. Excitation functions were calculated for the <sup>nat</sup>Gd(p,xn)<sup>155</sup>Tb reactions using TALYS 1.96 and EMPIRE 3.2 theoretical nuclear codes. The measured cross-section values were compared with the results of the theoretical calculations as well as with the experimental data from other works. The experimental value of the integral activity of the radionuclide <sup>155</sup>Tb was compared with the result obtained with the TALYS 1.96 code and with early published data.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.35–40 (2024) УДК 539.1.06 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-35

# ИССЛЕДОВАНИЕ ВТОРИЧНОГО РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ СТЕРИЛИЗАТОРА НА ОСНОВЕ СИЛЬНОТОЧНОГО УСКОРИТЕЛЯ ЭЛЕКТРОНОВ СИНУС-320

К.В. АФАНАСЬЕВ<sup>1</sup>, Р.Х. ГАЙСИН<sup>1</sup>, В.В. ГАУЗШТЕЙН<sup>2</sup>, Ю.М. ЧЕРЕПЕННИКОВ<sup>3,4\*</sup>, М.В. ШЕВЕЛЕВ<sup>4</sup>

<sup>1</sup>НПП КОРАД, Санкт-Петербург, Россия <sup>2</sup>Институт Сильноточной Электроники РАН, Томск, Россия <sup>3</sup>Институт прикладных проблем физики НАН Армении, Ереван, Армения <sup>4</sup>Томский Политехнический Университет, Томск, Россия

\*e-mail: yuryche89@gmail.com

(Поступила в редакцию 20 марта 2024 г.)

Проведено исследование характеристики вторичного рентгеновского излучения, генерируемого в процессе работы стерилизатора на основе сильноточного импульсно-периодического ускорителя электронов СИНУС-320. Энергия ускоренных электронов составляет 500 кэВ. В связи с этим возникает необходимость радиационной защиты при эксплуатации установки, что, в свою очередь, приводит к важности изучения энергетического спектра и мощности дозы вторичного рентгеновского излучения. Исследования были проведены методом статистического моделирования с использованием программного пакета GEANT4.

## 1. Введение

Один из методов стерилизации пищевых продуктов – обработка ионизирующим излучением. Для пищевой промышленности используется электронное излучение с максимальной энергией частиц до 20 МэВ и гамма-излучение с энергией до 10 МэВ. Такой диапазон энергий слишком низок, чтобы способствовать возникновению наведенной радиоактивности в продуктах переработки. Гамма-излучение имеет наибольшую проникающую способность, тогда как проникающая способность электронов значительно ниже. Поэтому ускоренные электроны чаще всего используются для обработки продуктов в относительно тонких упаковках или сыпучих продуктов, таких как какао-порошок или зерна. Подробный обзор применения технологий электронного и рентгеновского облучения в пищевой промышленности представлен в работах [1–6].

Несмотря на низкую проникающую способность, электронное излучение довольно часто применяется для стерилизации пищевых продуктов. В этом случае могут быть использованы различные типы ускорителей, в том числе бетатроны, линейные ускорители и электронные синхротроны. Каждый из этих типов ускорителей имеет свои преимущества и недостатки.

Независимо от типа используемого ускорителя в процессе эксплуатации стерилизатор становится источником интенсивного ионизирующего излучения. При взаимодействии ускоренных электронов с облучаемым продуктом, помимо ионизации происходит генерация тормозного излучения в рентгеновском диапазоне. Такие гамма-кванты, вылетая за пределы стерилизатора, становятся источником вторичного рентгеновского излучения. Поэтому ввод в эксплуатацию таких установок сопровождается монтажом радиационной защиты и дозиметрическими измерениями в тех местах, где планируется нахождение персонала.

В данной работе проведено исследование вторичного рентгеновского излучения, генерируемого в процессе работы стерилизатора на основе сильноточного импульсно-периодического ускорителя электронов СИНУС-320. Особенностями генератора СИНУС-320 является относительно низкая энергия ускоренных электронов (до 500 кэВ) и относительно большой ток пучка (до 5 кА). В качестве инструмента исследования был использован программный пакет GEANT4 [7]. Отметим, что применение пакета GEANT4 позволяет учитывать все виды излучения, необходимые для моделирования поглощенных доз в любом физическом объеме. Цель представленной работы – получить информацию об энергетическом спектре и мощности дозы вторичного рентгеновского излучения вокруг установки. Такая информация необходима как для корректной дозиметрии, так и для понимания оптимальной радиационной защиты.

### 2. Описание модели

Исследование проводилось посредством статистического моделирования с использованием программного пакета GEANT4. Основу модели составляют предполагаемая конструкция стерилизатора и параметры электронного пучка. С технической стороны стерилизатор состоит из ускорителя электронов, конвейерной ленты и свинцового каркаса. Ускоритель является источником ускоренных электронов, конвейерная лента необходима для перемещения облучаемого продукта, свинцовый каркас играет роль радиационной защиты. Общий вид стерилизатора с положением системы координат, а также основных частей показаны на рис.1. Облучаемый продукт располагается на ленточном конвейере из нержавеющей стали, непосредственно под ускорителем. Подробное описание импульсно-периодического ускорителя электронов СИНУС-320 представлено в работах [8–10].

Внешние размеры свинцового каркаса составляют 30×40×90 см<sup>3</sup>. Ширина конвейерной ленты – 30 см. Размеры катода – 10×30 см<sup>2</sup>. Для прохождения



Рис.1. (а) Общий вид стерилизатора с положением системы координат. (b) Расположение основных частей стерилизатора внутри свинцового каркаса.

конвейерной ленты с двух сторон свинцового каркаса (вдоль оси Z) находятся по два отверстия, шириной 1 см каждое. Толщина слоя защитного каркаса из свинца определяется из оценки мощности дозы вторичного рентгеновского излучения за его пределами.



Рис.2. (а) Место стерилизации детально. (b) Распределение начальной энергии электронов для ускоряющего напряжения 500 кВ.

На рис.2 показано место стерилизации, а также приведено распределение начальной энергии электронов. В качестве анода используется алюминиевая фольга толщиной 50 микрон. Пучок ускоренных электронов генерируется вблизи поверхности катода. Начальное положение электронов равномерно распределено по поверхности катода. Направление электронов – вертикально вниз к аноду. Пространство между катодом и анодом – вакуум. Электроны достигают поверхности облучаемого продукта, проникая через анодную фольгу, затем проходя несколько сантиметров воздуха. Энергетический спектр электронов в исходном состоянии зависит от ускоряющего напряжения. В данной работе был использован спектр, соответствующий ускоряющему напряжению ускорителя 500 кВ. Приведенные на рис.2 данные для энергетического спектра соответствуют измеренному импульсу напряжения в режиме ускорения электронов. Как показано на рисунке, существует небольшая доля электронов, энергия которых превышала максимально возможную энергию при однократном ускорении. Такой эффект обусловлен спецификой работы СИНУС-320.

### 3. Спектр вторичного рентгеновского излучения

Информация об энергетическом спектре вторичного рентгеновского излучения важна для качественной дозиметрии и проектировки радиационной защиты. Зачастую выбор оптимального дозиметра зависит от типа и энергетического спектра излучения. Используя разработанную модель, было проведено моделирование энергетического спектра вторичного рентгеновского излучения на расстоянии одного и двух метров от центра установки в плоскости XOZ. Толщина свинцовой защиты составляла 5 мм.

На рис.3 представлены результаты моделирования. Результаты получены для шести точек – по две на три направления относительно центра стерилизатора в плоскости XOZ. Спектры на рис.3 (а), (b) соответствуют направлению перпендикулярному движению конвейерной ленты; (с), (d) – направлению движения



Рис.4. Энергетический спектр вторичного рентгеновского излучения для разных положений относительно центра стерилизатора. (a) Z = 0, X = 1 м. (b) Z = 0, X = 2 м. (c) Z = 1, X = 0 м. (d) Z = 2, X = 0 м. (e) Z = 1, X = 1 м. (f) Z = 2, X = 2 м.

конвейерной ленты; (e), (f) направлению под углом 45 градусов относительно движения конвейерной ленты. Как видно, спектр для положений, где Z = 0 достаточно сильно отличается от других. Очевидно, что это связано с наличием отверстия, шириной в 1 см, для прохождения конвейерной ленты. Подавляющий вклад в спектры, соответствующие средней и правой части на рис.3, вносят гамма-кванты, проходящие через щелевое отверстие. Для положений, соответствующих Z = 0, равноценный вклад вносят гамма-кванты, проходящие через свинцовую защиту, толщиной 5 мм. Очевидно, что с увеличением толщины свинца, вклад таких гамма-квантов будет становиться меньше. Полученные результаты показывают, что для качественной дозиметрии необходимо использовать дозиметр с одинаковой чувствительностью в диапазоне энергий гаммаквантов (1–500) кэВ. Для таких условий хорошо подходит дозиметр Arrow-Tech 138-S.

#### 4. Мощность дозы вторичного рентгеновского излучения

Мощность дозы вторичного рентгеновского излучения – ключевой параметр, характеризующий степень воздействия ионизирующего излучения на биологические ткани. В связи с этим информация о мощности дозы является наиболее актуальной. На рис.4 приведены результаты статистического моделирования мощности дозы вторичного рентгеновского излучения для трех значений толщины свинцовой защиты: 5, 10 и 15 мм, (а) – зависимость от Zкоординаты в плоскости XOZ для X = 0, (b) – зависимость от X-координаты для Z = 0. Моделирование проводилось для одного импульса длительностью 13 нс, ток пучка – 4.5 кА.

Как видно, мощность дозы в направлении оси Z существенно выше, чем в направлении оси X. Причем значения дозы практически не меняется для разной толщины свинцовой защиты. Это объясняется доминирующим вкладом гамма-



Рис.3. Результаты статистического моделирования мощности дозы вторичного рентгеновского излучения. (а) – зависимость от *Z*-координаты в плоскости *XOZ* для X = 0. (b) – зависимость от *X*-координаты для Z = 0. Результаты приведены для одного импульса.

квантов, проникающих через щелевые отверстия для конвейерной ленты.

Ситуация в перпендикулярном направлении кардинально меняется. Мощность дозы существенно зависит от толщины свинцовой защиты. В частности, на расстоянии одного метра вдоль оси X от центра установки мощность снижается в 20 раз при увеличении толщины свинца с 5 мм до 15 мм. Однако в этом направлении для защиты, толщиной 15 мм, подавляющий вклад в мощность дозы вносят гамма-кванты, вылетающие через щелевое отверстие. Этот вывод обусловлен тем, что мощность дозы практически не зависит от расстояния для толщины свинца 15 мм.

С точки зрения радиационной безопасности в направлении оси Z даже для одного импульса доза значительно превышает предельно-допустимую. В соответствии со СНиП предельно-допустимая доза составляет 1 мкЗв/час. В направлении оси X мощность дозы значительно меньше. Однако, даже для толщины свинцовой защиты 15 мм и частоты работы ускорителя 1 Гц, мощность дозы составит (3–7) мкЗв/час на расстоянии (1–2) метра.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что эксплуатация стерилизатора сопровождается высокой мощностью дозы вторичного рентгеновского излучения, значительно превышающей предельно-допустимую. Таким образом с точки зрения радиационной безопасности, подачу облучаемого продукта на конвейерную ленту необходимо осуществлять с применением автоматики. При этом установка должна находиться в отдельном помещении, удовлетворяющем условиям радиационной защиты.

#### 5. Заключение

В представленной работе проведено исследование вторичного рентгеновского излучения, генерируемого в процессе работы стерилизатора на основе сильноточного импульсно-периодического ускорителя электронов СИНУС-320. С применением пакета GEANT4 была создана модель стерилизатора. Методом Монте-Карло было проведено моделирование, соответствующее одному импульсу электронного пучка, длительностью 13 нс. Получена информация об энергетическом спектре и мощности дозы вторичного рентгеновского излучения вокруг исследуемой установки. Анализ полученных данных подтверждает, что исследуемая установка является опасным источником ионизирующего излучения. Мощность дозы на расстоянии до трех метров от центра установки существенно превышает предельно-допустимую несмотря на свинцовую защиту, толщиной до 15 мм. Эксплуатация стерилизатора на основе импульсно-периодического ускорителя СИНУС-320 должна осуществляться в помещении, удовлетворяющем критериям радиационной безопасности.

Исследование выполнено при поддержке гранта Российского научного фонда (проект № 24-29-00077, https://rscf.ru/en/project/24-29-00077/).

## ЛИТЕРАТУРА

- 1. D. Findlay, T. Parsons, M. Sene. Int. J. Rad. Appl. Instr. A., 43, 567 (1992).
- 2. E. Ic, N. Cetinkaya. Radiat. Phys. Chem., 181, 109324 (2021).
- 3. S. Pillai, E. Pillai. Encyclopedia of Nuclear Energy, 4, 313 (2021).
- 4. H.M. Lung, Y.C. Cheng, Y.H. Chang et al. Trends Food Sci. Technol., 4, 66 (2015).
- 5. U. Bliznyuk. Sci. Rep., 12, 750 (2022).
- 6. V. Morgunov. Appl. Radiat. Isot., 169, 109565 (2021).
- 7. S. Agostinelli et al. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A., 506, 250 (2003).
- 8. S. Korovin, V. Rostov. Russ. Phys. J., 39, 1177 (1996).
- 9. S. Korovin, V. Rostov, S. Polevin, I. Pegel, E. Schamiloglu, M. Fuks, R. Barker. Proc. IEEE, 92, 1082 (2004).
- V. Rostov, V. Barmin, V. Landl, P. Vyhodtsev, K. Artemov, A. Stepchenko. Russ. Phys. J., 62, 1253 (2019).

## SIMULATION OF SECONDARY X-RAY OF STERILIZATION SETUP BASED ON HIGH-CURRENT PULSE ELECTRON ACCELERATOR SINUS-320

## K. AFANASYEV, R. GAISIN, V. GAUZSHTEIN, YU. CHEREPENNIKOV, M. SHEVELEV

The work presents a study of the parameters of secondary X-ray radiation generated during the operation of a sterilization setup based on a high-current pulse-periodic electron accelerator SINUS-320. The energy of accelerated electrons equals 500 keV. Therefore, the issues of radiation protection during operation of the installation is highly topical, that leads to the importance of studying the energy spectrum and dose rate of secondary X-ray radiation. The studies were carried out by statistical simulation via GEANT4 toolkit.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.41–50 (2024) УДК 538.915 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-41

# ПРОСТОЕ ОБОБЩЕНИЕ ЦЕПОЧКИ КИТАЕВА ДЛЯ **Z**<sub>3</sub> ПАРАФЕРМИОНОВ

# Т.С. АКОПЯН<sup>1,2\*</sup>, Р.Г. ВАРОСЯН<sup>1</sup>, Г.Г. АРУТЮНЯН<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Ереванский государственный университет, Ереван, Армения <sup>2</sup>Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Ереван, Армения

\*e-mail: tigran.hakobyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 19 марта 2024 г.)

Построена квантовая цепочка, состоящая из квазичастиц с дробной статистикой (парафермионов) с угловым параметром  $\theta = 2\pi/3$ , которая обладает топологической фазой. Она получена из одномерной спиновой модели с топологическим порядком, защищенным симметрией  $Z_3 \times Z_3$  (обобщенной модели кластера). Построены и исследованы нулевые парафермионные моды, возникающие на границах цепочки, которые остаются стабильными из-за вакуумной щели и топологического порядка в системе.

### 1. Введение

Свойства основного состояния и элементарных возбуждений квантовых систем при нулевой температуре в течение долгого времени остаются в центре внимания исследований в области физики конденсированных сред. В последнее время все более отчетливо проявляется интерес к топологическим характеристикам этих состояний [1]. С одной стороны, это обусловлено технологическими прорывами, связанными с внедрением квантовой механики в область технологий, успехами в передаче квантовой информации, в квантовой телепортации, а также в построении квантовых компьютеров. Вместе с тем, многие эффекты и вещества имеют ярко выраженную топологическую природу: квантовый эффект Холла, топологические диэлектики и сверхпроводники. Топологические фазы устойчивы по отношению к локальным возмущениям, что позволяет системе успешно исправлять ошибки в квантовых вычислениях.

Сверхпроводящая цепочка Китаева является простейшей моделью, обладающей нетривиальной топологической фазой, которая проявляется в виде двух нулевых майорановских мод, возникающих на обоих границах системы. Они образуют вместе нелокальный бесспиновый дираковский фермион и устойчивы по отношению к локальным возмущениям, что делает возможным их применение в топологических квантовых вычислениях [2, 3]. Парафермионы являются обобщением майорановских фер-мионов для частиц с дробной статистикой. Они возникают как квазичастичные возбуждения в спиновых системах с циклической симметрией [4, 5], а их нуле-вые моды образуются на границах некоторых одномерных спиновых систем [6, 7]. На основе парафермионов проектируются квантовые компьютеры [8], где вместо кубитов применяются их аналоги с тремя

(трибит) и более состояниями [9].

В данной работе построена квантовая цепочка, состоящая из парафермионов, статистика которых задается фазой  $\omega = e^{i\theta}$  с дробным угловым параметром  $\theta = 2\pi/3$ , которая обладает нетривиальной топологической фазой. Она получается «парафермионизацией» одномерной спиновой модели с топологическим порядком, защищенным симметрией  $Z_3 \times Z_3$  (обобщенной модели кластера). Построены и исследованы нулевые парафермионные моды, возникающие на границах цепочки, которые остаются стабильными благодаря щели между энергией основного состояния и остальным спектром, а также нетривиального топологического порядка.

Данная статья построена следующим образом. В следующем разделе приводится краткий обзор одномерной свехпроводяшей модели Китаева. При определенной фазе на ее границах образуются две нулевые майорановские моды, которые легко обнаружить, выразив гамильтониан через решёточные майорановские фермионы. В третьем разделе описывается одномерная модель кластера, которая является обобщением модели Поттса (с тремя локальными состояниями) для нетривиальной топологической фазы, которая остается стабильной при сохранении  $Z_3 \times Z_3$  симметрии. В четвертом разделе строится реализация модели кластера через решеточные парафермионы с применением преобразования Фрадкина-Каданова. Последний раздел посвящен граничным парафермионным модам, которые являются инвариантами системы. Обсуждаются их связь с  $Z_3 \times Z_3$ симметрией, а также сплетающие операторы, постоенные на их основе, которые актуальны в квантовых вычислениях.

## 2. Цепочка Китаева, майорановские фермионы

Рассмотрим сначала гамильтониан одномерной свехпроводяшей модели, состоящей из бесспиновых фермионов (цепочка Китаева) [2, 3]:

$$H = -t \sum_{j=1}^{N-1} \left( c_j^+ c_{j+1} + c_{j+1}^+ c_j \right) + \Delta \sum_{j=1}^{N-1} \left( c_j c_{j+1} + c_{j+1}^+ c_j^+ \right) - \mu \sum_{j=1}^{N} \left( c_j^+ c_j - \frac{1}{2} \right), \tag{1}$$

где µ является химическим потенциалом, а  $\Delta$ -член описывает рождение и уничтожение фермионных пар в соседних узлах. Кинетический *t*-член задает переход (скачок) частицы на соседний узел решетки. Данная система имеет свободные граничные условия, при которых первый и последний фермионы не связаны друг с другом. Здесь  $c_j^+$  и  $c_j$  являются, соответственно, операторами рождения и уничтожения бесспинового фермиона на *j*-ом узле. Они удовлетворяют стандартным антикоммутационным соотношениям:

$$\{c_j^+, c_k^+\} = \delta_{jk}, \qquad \{c_j^-, c_k^+\} = \{c_j^+, c_k^+\} = 0, \qquad j, k = 1, 2, \dots, N.$$
 (2)

Эти операторы соответствуют обычным фермионам, которые описываются комплексными волновыми функциями и операторами. Соответственно, частицы и античастицы различаются друг от друга. Майорановский же фермион описывается действительной волновой функцией. В этом случае частица просто совпадает со своей античастицей. Обычному фермиону будет соответствовать два майорановских фермиона, которые задаются эрмитовыми операторами:

$$\gamma_{2j-1} = c_j + c_j^+, \qquad \gamma_{2j} = i(c_j^+ - c_j).$$
 (3)

Обратные отношения при этом выглядят следующим образом:

$$c_{j} = \frac{1}{2} (\gamma_{2j-1} + i\gamma_{2j}), \qquad c_{j}^{+} = \frac{1}{2} (\gamma_{2j-1} - i\gamma_{2j}).$$
(4)

В результате, N комплексных фермионов задаются 2N майорановскими фермионами. Операторы Майораны удовлетворяют тем же соотношениям, что и гамма матрицы Дирака в евклидовом пространстве:

$$\{\gamma_j, \gamma_k\} = 2\delta_{jk}, \qquad \gamma_j^2 = 1.$$
(5)

Цепочку Китаева можно выразить через майорановские операторы. Ограничивая константы условием  $t = \Delta$ , можно представить гамильтониан (1) в виде:

$$H = -\frac{i\mu}{2} \sum_{j=1}^{N} \gamma_{2j-1} \gamma_{2j} + i\Delta \sum_{j=1}^{N} \gamma_{2j} \gamma_{2j+1}.$$
 (6)

Заметим, что несмотря на мнимый коэффициент, он, конечно, является эрмитовым вследствие антикоммутативности и эрмитовости гамма операторов.

При нулевой температуре в зависимости от значений параметров данная система может находиться в двух различных фазах. В частности, при  $\Delta = 0$  имеет место тривиальная фаза, при которой основное состояние невырождено. В этом случае все майорановские фермионы присутствуют в гамильтониане (6). Напротив, при  $\mu = 0$  система находится в топологически нетривиальной фазе, которая характеризуется вырождением основного состояния. Система сводится к гамильтониану

$$H = i \sum_{j=1}^{N} \gamma_{2j} \gamma_{2j+1},$$
 (7)

где отсутствуют операторы  $\gamma_1$  и  $\gamma_{2N}$ , которые соотвесттвуют первой и последней частице. Поэтому эти операторы коммутируют с гамильтонианом:

$$[H,\gamma_1] = [H,\gamma_{2N}] = 0.$$
(8)

Благодаря данной симметрии, на границах системы образуются нулевые майорановские моды, что одновременно приводит к вырождению основного состояния. Более того, вместе они образуют один комплексный фермион, который нелокален, поскольку состоит из пространственно разделенных мод. Этот фермион можно также задать через обычные операторы рождения и уничтожения:

$$c = (\gamma_1 + i\gamma_{2N})/2,$$
  $c^+ = (\gamma_1 - i\gamma_{2N})/2.$  (9)

Очевидно, данная дираковская квазичастица неявным образом присутствует и в первоначальном гамильтониане. Она приводит к двукратному вырождению основного состояния, что позволяет использовать последнее в качестве квантового бита, или кубита для квантовых вычислений. Более того, благодаря щели между элементарными возбуждениями и основным состоянием, а также топологической природе нулевых граничных мод, полученный таким образом кубит остается стабильным и защищенным от малых локальных возмущений. Поэтому данное состояние называют топологически защищенным.

С целью получения нескольких кубитов рассматривается система, состоящая из нескольких невзаимодействующих одномерных моделей Китаева в нетривиальной топологической фазе (7). Локальный член такой системы содержит два майорановских фермиона, находящихся на фиксированном расстоянии а друг от друга [10]:

$$H_a = i \sum_{j=1}^{N-a} \gamma_{2j} \gamma_{2(j+a)-1}.$$
 (10)

При a = 0 модель тривиальна. В этом случае гамильтониан эквивалент оператору полного числа частиц и не содержит граничных мод. Первый нетривиальный случай, a = 1, соответствует обсуждаемой выше цепочке Китаева с нулевыми майорановскими модами на границах (7). В случае же a = 2 возникают две назависимые цепочки, в результате чего на каждой границе появляются по два майорановских фермиона с нулевой энергией. Эта система рассматривается ниже. В общем случае возникают a независимых цепочек и 2a краевые майорановские моды.

Существует соответствие между бесспиновыми фермионами и неподвижными бозонами со спином <sup>1</sup>/<sub>2</sub>, которые задаются матрицами Паули. На цепочке оно осуществляется преобразованием Йордана-Вигнера, которое переводит операторы спина в операторы рождения и уничтожения фермионов. Данная фермионизация используется, например, для точного решения одномерной *XX* модели Гейзенберга. Описанный переход задается следующими соотношениями:

$$\gamma_{2j-1} = Z_j \left(\prod_{k=1}^{j-1} X_k\right), \qquad \gamma_{2j} = Y_j \left(\prod_{k=1}^{j-1} X_k\right),$$
(11)

где использованы краткие обозначения  $X = \sigma_x$ ,  $Y = \sigma_y$ ,  $Z = \sigma_z$  для матриц Паули. Цепочка Китаева (5), например, после преобразования Йордана-Вигнера принимает следующий вид:

$$H = -J \sum_{j=1}^{N-1} Z_j Z_{j+1} - h \sum_{j=1}^{N} X_j,$$
(12)

где  $J = -\Delta$ ,  $h = \mu/2$ . Полученная спиновая цепочка совпадает с взаимодействующей квантовой моделью Изинга в поперечном поле.

#### 3. Модели Изинга и Поттса с нетривиальной топологией

Стандартная одномерная кластерная модель [1, 11, 12] является простейшей моделью с нетривиальным топологическим порядком, который остается стабильным благодаря ее дискретной симметрии, которая задается группой  $Z_2 \times Z_2$ . Ее основное состояние используется в квантовых вычислениях. Цепочка состоит из половинных спинов, а спектр равен спектру свободной модели Изинга, которая получается из гамильтониана (12) при условии J = 0, h = 1. Вышеуказанная симметрия модели образована спиновыми отражениями, примененными отдельно как к четным, так и к нечетным узлам решетки. Гамильтониан системы описывается следующей формулой:

$$H = -\sum_{i=2}^{N-1} Z_{i-1} X_i Z_{i+1},$$
(13)

что делает ее эквивалентной вышеприведенной модели Китаева в топологически нетривиальной фазе (7). Действительно, фермионизация локального члена в (13) приводит к выражению  $i\gamma_{2i-2}\gamma_{2i+1}$ , в чем можно легко убедиться, исходя из преобразований Йордана— Вигнера (11).

Существует обобщение топологически нетривиальной модели Изинга (13)

для случая модели Поттса [13]. В трехспиновой модели на узлах решётки расположены спины с тремя различными состояниями, которые нумеруются последовательными числами 0, 1, 2. Они же задают трехмерный квантовый бит, или трибит, который вместе с кубитом также используется в кванто-вых вычислениях 9. В отличие от изинговского случая (13), в топологической модели Поттса четные и нечетные локальные члены в гамильтониане будут иметь различный вид:

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{r=1}^{L} Z_{2r-1} X_{2r} Z_{2r+1}^{+} - \frac{1}{2} \sum_{r=1}^{L-1} Z_{2r}^{+} X_{2r+1} Z_{2r+2} + \text{H. c.}$$
(14)

Здесь введены трехмерные обобщения стандартных матриц Паули, которые соответствуют рассматриваемой системе. Эти матрицы удовлетворяют следующим простым алгебраическим соотношениям:

$$ZX = \omega XZ, \qquad X^3 = Z^3 = 1, \qquad \omega = \exp\{2\pi i/3\}.$$
 (15)

На каждом узле решетки они действуют на три базисные спиновые состояния и имеют следующий простой вид:

$$Z = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \omega & 0 \\ 0 & 0 & \omega^{-1} \end{pmatrix}, \qquad \qquad X = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}.$$
(16)

Заметим, что первая матрица выражается через экспоненту  $\exp\left(\frac{2\pi i}{3}S_z\right)$  спин-1 матрицы  $S_z$  с последующей перегруппировкой ее диагональных элементов. Вторая же матрица переставляет циклически все три спиновые состояния.

Легко видеть, что обобщенные матрицы Паули являются унитарными:

$$X^{+}X = Z^{+}Z = 1, \qquad X^{+} = X^{2}, \qquad Z^{+} = Z^{2}.$$
 (17)

Отметим также, что вышеприведенный гамильтониан (14) определен на решетке с нечетным числом

$$N = 2L + 1 \tag{18}$$

спиновых узлов в отличие от изинговской модели (13), где длина цепочки произвольна. Кластерный гамильтониан (14) состоит из взаимно-коммутирующих локальных членов. Как и в случае изинговской модели, его спектр совпадает со спектром невзаимодействующей модели Поттса с гамильтонианом  $H = -\frac{1}{2}\sum_i (X_i + X_i^+)$ . Операторы симметрии, которые сохраняют топологический параметр порядка основного состояния, также строятся аналогичным образом: они соответствуют произведению *X*-матриц, расположенных отдельно на четных и нечетных узлах решетки:

$$[H, X_{\text{even}}] = [H, X_{\text{odd}}] = 0,$$
 (19)

$$X_{\text{even}} = X_2 X_4 \dots X_{N-1}, \qquad X_{\text{odd}} = X_1 X_3 \dots X_N.$$
 (20)

Заметим, что в силу нечетности общего числа спинов (18), генератор  $X_{odd}$  содержит на один оператор больше. Оба генератора взаимно коммутируют и удовлетворяют соотношениям, аналогичным (17). Они образуют абелеву группу  $Z_3 \times Z_3$ . Ее вторая когомология совпадает с группой  $Z_3$ , три элемента которой характеризуют различные топологические фазы, защищенные данной симметрией [13]. При этом тривиальный элемент в  $Z_3$  соответствует обычной модели Поттса, а два другие – гамильтониану (14) и его аналогу, полученному заменой всех операторов  $Z_l$  на  $Z_l^+$ .

В наиболее общем случае различные топологические фазы, защищенные определенной симметрией, классифицируются по (d + 1)-ым когомологиям соответствующей группы, где d – размерность системы [1, 14]. Поэтому рассматриваемые фазы характеризуются второй когомологией, которая также описывает различные мультиплеты, допускающие дополнительный фазовый множитель в произведении (т. е. проективные представления). Следует отметить, что недавно были рассмотрены двумерные модели Поттса на треугольной решетке с топологическим порядком, защищенным симметриями  $Z_3 \times Z_3 \times Z_3$  и  $Z_3$  и исследованы соответствующие граничные безмассовые моды, которые определяются одномерным гамильтонианом [15, 16].

## 4. Модель кластера, состоящая из парафермионов

Как уже отмечалось во введении, парафермионы являются экзотическими квазичастицами с дробной статистикой. Они обобщают майорановские фермионы и существуют только в в одномерных и двухмерных системах. В случае, когда отдельно взятая частица имеет всего три различных состояния, парафермионы описываются операторами, удовлетворяющими следующей алгебре:

$$\chi_i^+ \chi_i = 1, \qquad \chi_i^3 = 1, \qquad \chi_i \chi_j = \omega \chi_j \chi_i, \qquad i < j.$$

Дробная статистика определяется фазой с угловым параметром  $\theta = 2\pi/3$  (15), а индекс *i* нумерует узел решетки, где находится частица. Заметим, что майорановским фермионам соответствует фазовый угол  $\theta = \pi$ .

Решеточные парафермионы посредством преобразования Фрадкина – Каданова [4] выражаются через локальные спиновые операторы, которые представляются обобщенными матрицами Паули (16). Указанное отображение обобщает вышеприведенное преобразование Йордана- Вигнера (11) для частиц с дробной статистикой и задается в нашем случае следующими формулами:

$$\chi_{2l-1} = Z_l \prod_{k < l} X_k, \qquad \chi_{2l} = \omega Z_l \prod_{k \leq l} X_k.$$
(22)

Стоит отметить, что из-за хвоста, образованного X операторами, сложность представления растет с ростом индекса, так что наиболее простые выражения имеют частицы, расположенные в начале цепочки:

$$\chi_1 = Z_1, \qquad \chi_2 = \omega Z_1 X_1, \qquad \chi_3 = X_1 Z_2, \qquad \chi_4 = \omega X_1 Z_2 X_2.$$
 (23)

Преобразование Фрадкина- Каданова (22) легко обратить. Соответствующие соотношения будут выглядеть следующим образом:

$$X_{l} = \omega^{-1} \chi_{2l-1}^{+} \chi_{2l},$$

$$Z_{l} = \omega^{l-1} \chi_{2l-1} \chi_{2l-2}^{+} \chi_{2l-3} \chi_{2l-4}^{+} \dots \chi_{2}^{+} \chi_{1},$$

$$Y_{l} = \omega^{l-1} \chi_{2l} \chi_{2l-2}^{+} \chi_{2l-3} \chi_{2l-4}^{+} \dots \chi_{2}^{+} \chi_{1}.$$
(24)

Первая формула из приведенного списка позволяет построить парафермионное представление для четного и нечетного генераторов  $Z_3 \times Z_3$  симметрии (20):

$$X_{even} = \omega^{L} \chi_{3}^{+} \chi_{4} \chi_{7}^{+} \dots \chi_{2N-3}^{+} \chi_{2N-2}, \qquad X_{odd} = \omega^{L+1} \chi_{1}^{+} \chi_{2} \chi_{5}^{+} \dots \chi_{2N-1}^{+} \chi_{2N}.$$
(25)

Вместе оба генератора составляют чередующееся произведение по всем

частицам, которое образует диагональную  $Z_3$  симметрию модели:

$$X_{\text{total}} = X_{\text{odd}} X_{\text{even}} = \omega^N \chi_1^+ \chi_2 \chi_3^+ \chi_4 \dots \chi_{2N-1}^+ \chi_{2N}.$$
(26)

Сосредоточимся теперь на парафермионном представлении кластерного гамильтониана, изначально определенного через трехмерные матрицы Паули (14), (16). Тогда, используя также алгебраические соотношения, которым удовлетворяют парафермионные операторы (21), можно через них выразить локальные члены в гамильтониане (14):

$$Z_{l-1}^{+}X_{l}Z_{l+1} = \omega^{-1}\chi_{2l-2}^{+}\chi_{2l+1},$$

$$Z_{l-1}X_{l}Z_{l+1}^{+} = \omega^{-1}\chi_{2l+1}^{+}\chi_{2l-2}\left(\chi_{2l-1}^{+}\chi_{2l}\right)^{2} = \omega\chi_{2l-2}\chi_{2l-1}\chi_{2l}^{+}\chi_{2l+1}^{+}.$$
(27)

Заметим, что первое уравнение соответствует нечетному значению индекса *l*, а второе – четному.

В результате, гамильтониан обобщенной модели кластера с открытыми граничными условиями, будучи выраженным через парафермионы, приобретает следующий вид:

$$H = -\frac{\omega^{-1}}{2} \sum_{r=1}^{L-1} \chi_{4r}^{+} \chi_{4r+3} - \frac{\omega}{2} \sum_{r=1}^{L} \chi_{4r-2} \chi_{4r-1} \chi_{4r}^{+} \chi_{4r+1}^{+} + \text{H. c.}$$
(28)

Отметим, что формально вторая сумма представляет собой четырехчастичное взаимодействие. Тем не менее, все локальные члены коммутируют друг с другом. Конечно, это свойство наследуется от родительской модели (14). Как видно из второго уравнения в (27), указанное взаимодействие отсутствует для цепочки Китаева с майорановскими фермионами (7), переходя в свободный член, билинейный по частицам.

#### 5. Нулевые парафермионнные моды на границах

Как было отмечено выше, модели спиновых кластеров (13), (14) унитарно эквивалентны, соответственно, моделям Изинга и Поттса. Поэтому их основные состояния получаются из соответствующих со-стояний указанных систем. В результате унитарного преобразования они при-обретают дополнительные фазовые множители в разложении по базисным спиновым состояниям. В частности, для поттсовского кластера (14) основное состояние с точностью до несущественного нормировочного множителя приоб-ретает следующий вид:

$$|0\rangle = \sum_{n_1,...,n_N} \omega^{-n_1 n_2 + n_2 n_3 - ... + n_{N-1} n_N} |n_1 n_2 ... n_N\rangle,$$
 (29)

где числа  $n_l = 0, 1, 2$  задают значения спина (или трибита) на *l*-ом узле. Общее число спинов нечетно, чем и объясняется выбор знака в последнем степенном члене (18). Для случая изинговского кластера (13) основное состояние получается заменой  $\omega \rightarrow -1$ ,  $n_l \rightarrow 0$ , 1 при любом количестве спинов. При периодических граничных условиях степень в фазовом множителе будет содержать также и связь между первым и последним членом, а состояние (29) будет невырожденным с ненулевой щелью между вакуумом и (ненулевыми) элементарными возбуждениями в системе.

При свободных граничных условиях (именно они и рассматриваются в данной работе) имеются нулевые граничные моды, которые существуют благодаря краевым инвариантам модели. Левые инварианты задаются двумя первыми нечетными парафермионными модами:

$$\chi_1 = Z_1, \qquad \chi_3 = X_1 Z_2.$$
 (30)

В этом можно убедиться, используя точный вид парафермионного гамильтониана (28), а также коммутационные соотношения (21). В то же время, правые инварианты соответствуют последним двум четным модам:

$$\chi_{2N} = \omega Z_N^+ X_{total}, \qquad \chi_{2N-2} = \omega X_N^+ Z_{N-1} X_{total}.$$
 (31)

Напомним, что справа в обоих выражениях стоит генератор комбинированной  $Z_3$  симметрии модели (26).

В результате, четыре краевых парафермионных инварианта (30), (31) ответственны за полное нарушение спонтанной  $Z_3 \times Z_3$  симметрии гамильтониана (28). Действительно, действием на базовое основное состояние (29) они порождают все другие вакуумные состояния, которые одновременно образуют нулевые краевые моды:

$$\chi_1^n \chi_3^m \chi_{2N-2}^k \chi_{2N}^l | 0 \rangle$$
, где  $n, m, k, l = 0, 1, 2.$  (32)

Формально, построенный набор состоит из 81 состояния. Однако, не все они являются независимыми: из первых двух уравнений (23) легко видеть, что, как и в случае с майорановскими фермионами, двум различным парафермионам соответствует только один спин, который в нашем случае трёхмерный. Поэтому, четыре парафермионных оператора порождают только две независимые спиновые степени свободы, что и приводит к девятикратному вырождению основного состояния в полном соответствии с группой симметрии. В качестве нулевых мод можно, например, выбрать приведенный ниже первый или второй набор состояний:

$$\left(\chi_{1}^{+}\chi_{3}\right)^{n}\left(\chi_{2N-2}^{+}\chi_{2N}\right)^{m}|0\rangle, \qquad \left(\chi_{1}^{+}\chi_{2N}\right)^{n}\left(\chi_{3}^{+}\chi_{2N-2}\right)^{m}|0\rangle, \tag{33}$$

где значения степеней приведены в уравнении (32). Отметим, что в обоих случаях биномы в скобках взаимно коммутируют. Вместе с тем, две левые парафермионные моды (30), которые являются симметриями модели, не коммутируют между собой, а порождают дробный фазовый множитель  $\omega$  при перестановке. То же самое верно и для правых краевых парафермионов (31). Это приводит к тому, что  $Z_3 \times Z_3$  симметрия системы, будучи разделенной на правую и левую части, не сохраняется в первоначальном виде, а приобретает дополнительный фазовый множитель (он порождает проективное представление). Данное свойство называется раздроблением (фракционализацией) симметрии и является характерной особенностью нетривиальных топологических фаз, защищенных этой симметрией.

Нулевые краевые моды применяются в квантовых вычислениях. Соответствующие квантовые схемы строятся на основе логических квантовых элементов (вентилей) действующих на один или два кубита (трибита). В качестве таковых можно использовать сплетающие операторы и операторы измерения, которые сохраняют четность состояния. Оператор четности двух парафермионов определяется как 8:

$$L_{i} = \omega \chi_{i+1}^{+} \chi_{i} : \quad L_{2l-1} = X_{l}^{+}, \quad L_{2l} = Z_{l} Z_{l+1}^{+}.$$
(34)

Все операторы  $L_j$  коммутируют друг с другом, кроме ближайших соседей. Последние, аналогично парафермионам, удовлетворяют коммутационному соотношению

$$L_j L_{j+1} = \omega L_{j+1} L_j. \tag{35}$$

Все эти соотношения легко вытекают из уравнений (21) и (24).

Используя оператор четности двух соседних парафермионов, можно построить вышеупомянутый сплетающий оператор, который унитарен и имеет следующий вид [8, 17]:

$$U_{j} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left( \omega + L_{j} + L_{j}^{+} \right) = \frac{\omega}{\sqrt{3}} \left( 1 + \chi_{j+1}^{+} \chi_{j} + \chi_{j}^{+} \chi_{j+1} \right).$$
(36)

Применяя парафермионную алгебру (21), можно проверить, что квадрат сплетающего оператора не является независимой величиной, а представляется в виде:

$$U_j^2 = iU_j + 1. (37)$$

Заметим, что отсюда вытекает, что  $U_j^3 = i$ . Более того, как и в случае операторов четности, все сплетающие операторы кроме ближайших соседей взаимно коммутируют. Рядом же расположенные операторы удовлетворяют уравнению Янга–Бакстера:

$$U_{j}U_{k} = U_{k}U_{j}, \quad \text{где} \quad |j-k| \ge 2, \qquad U_{j}U_{j+1}U_{j} = U_{j+1}U_{j}U_{j+1}.$$
 (38)

Соотношения (37) и (38) полностью определяют алгебру сплетающих операторов. Для квантовых вычислений актуальны четыре краевые парафермионные моды (30), (31), которые остаются стабильными из-за топологической защищенности.

Стоит напомнить также, что аналогичные операторы для майорановских фермионов строятся на основе фермионной четности  $L_j = i\gamma_j\gamma_{j+1}$ . Они также унитарны и имеют следующий вид [18]:

$$U_{j} = \frac{1}{\sqrt{2}} (1 - iL_{j}) = \frac{1}{\sqrt{2}} (1 + \gamma_{j}\gamma_{j+1}), \qquad U_{j}^{2} = \gamma_{j}\gamma_{j+1} = \sqrt{2}U_{j} - 1, \qquad (39)$$

откуда сразу следует, что  $U_j^4 = -1$ .

## 6. Заключение

В работе построена простая квантовая цепочка из парафермионов, которые дают фазу  $\omega = e^{2\pi i/3}$  при перестановке. Гамильтониан системы выводится преобразованием Фрадкина-Каданова из спинового кластера, который соответствует модели Поттса с нетривиальным топологическим порядком, защищенным симметрией  $Z_3 \times Z_3$ . Рассматривается открытая цепочка, содержащая 4L + 2 парафермиона. Она состоит из взаимно коммутирующих локальных частей, билинейных и биквадратных по частицам. Подобно цепочке Китаева, состоящей из майорановских фермионов, на границах образуются парафермионные моды с нулевой энергией, которых в нашем случае четыре (по две на каждом краю). Эти безмассовые моды приводят к 9-кратному вырождению основного состояния с полным нарушением спонтанной симметрии. При этом симметрия, которая защищает топологический прядок, выражается через комбинированные четности парафермионов. Стабильность краевых мод относительно локальных возмущений можно использовать для квантовых вычислений. В качестве квантовых вентилей можно использовать сплетающие операторы, которые удовлетворяют уравнениям Янга-Бакстера.

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 и в рамках программы 21AG-1C047 Комитета по высшему образованию и науке.

Авторы не имеют конфликта интересов. Они 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

- B. Zeng, X. Chen, D.-L. Zhou, X.-G. Wen. Quantum Information Meets Quantum Matter – From Quantum Entanglement to Topological Phase in Many-Body Systems: Springer, New York, 2019.
- 2. A. Kitaev. Phys.-Usp, 44, 131 (2001).
- 3. A. Kitaev, C. Laumann. arXiv:0904.2771 (2008).
- 4. E. Fradkin, L.P. Kadanoff. Nucl. Phys. B, 170, 1 (1970).
- 5. F.C. Alcaraz, R. Koberle. Phys. Rev. D, 24, 1562 (1981).
- 6. P. Fendley. J. Stat. Mech., P11020 (2012).
- 7. J. Alicea, P. Fendley. Annu. Rev. Condens. Matter Phys., 7, 119 (2016).
- 8. A. Hutter, D. Loss. Phys. Rev. B, 93, 125105 (2016).
- 9. Y. Wang, Z. Hu, B. C. Sanders, S. Kais. Front. Phys., 8, 479 (2020).
- 10. R. Verresen, R. Moessner, F. Pollmann. Phys. Rev. B, 96, 165124 (2017).
- 11. W.P. Su, J.R. Schrieffer, A.J. Heeger. Phys. Rev. Lett. 42, 1698 (1979).
- 12. J.H. Han, E. Lake, H.T. Lam, R. Verresen, Y. You. arXiv:2309.10036 (2023).
- 13. S.D. Geraedts, O.I. Motrunic. arXiv:1410.1580 (2014).
- 14. X. Chen, Z.-C. Gu, Z.-X. Liu, X.-G. Wen. Science, 338, 1604 (2012).
- 15. H. Topchyan, V. Iugov, M. Mirumyan, Sh. Khachatryan, T. Hakobyan, T. Sedrakyan. JHEP, 12, 199 (2023).
- 16. H. Topchyan, V. Iugov, M. Mirumyan, T. Hakobyan, T. Sedrakyan, A. Sedrakyan. arXiv:2312.15095 (2023).
- 17. L.-W. Yu, M.-L. Ge. Scientific Reports, 6, 21497 (2016).
- 18. D. A. Ivanov. Phys. Rev. Lett. 86, 268 (2001).

#### SIMPLE EXTENSION OF KITAEV CHAIN FOR $Z_3$ PARAFERMIONS

### T.S. HAKOBYAN, R.H. VAROSYAN, G.H. HARUTUNYAN

A simple quantum chain with topological phase is constructed. It is formed by parafermions (quasiparticles obeying the fractional statistics) with angular parameter  $\theta = 2\pi/3$ . The model is derived from the one-dimensional spin model with topological order protected by the  $Z_3 \times Z_3$  symmetry (generalized cluster model). Parafermionic zero modes arising at the chain boundaries, which remain stable due to the gap and topological order, are constructed and studied.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.51–56 (2024) УДК 621.373 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-51

# ГЕНЕРАЦИЯ НОВОГО ТИПА СИМИЛЯРИТОНОВ В ОПТИЧЕСКИХ ВОЛОКНАХ

# А. КУТУЗЯН<sup>1\*</sup>, В. АВЕТИСЯН<sup>1</sup>, М. СУКИАСЯН<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Ереванский государственный университет, Ереван, Армения <sup>2</sup>Институт синхротронных исследований CANDLE, Ереван, Армения

#### \*e-mail: akutuzyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 13 февраля 2024 г.)

На основе детального численного анализа и сравнения с экспериментальными наблюдениями выявлен нелинейный процесс генерации симиляритона нового типа в оптических волокнах в области отрицательной дисперсии. Симиляритон нового типа имеет игольчатую форму с острой вершиной и широким основанием, формируется в пассивном одномодовом оптическом волокне при слабой нелинейности и сильной дисперсии групповых скоростей. Найдены согласованные граничные условия для параметров входного импульса и характеристики световода, при которых генерируются такие самоподобно распространяющиеся импульсы.

### 1. Введение

Симиляритоны в оптических волокнах наряду с солитонами являются наиболее известным классом явлений самоподобия в оптике и лазерной физике [1–4]. Оптические симиляритоны впервые обсуждались в 1993 году, а затем впервые были теоретически и экспериментально продемонстрированы в волоконных усилителях в 2000 году [2]. В отличие от солитонов, симиляритоны обладают способностью противостоять сильной нелинейности, не испытывая при этом никаких волновых распадов или искажений. Симиляритоны имеют свойство развиваться самоподобно, то есть сохранять свою форму. Оптические усилители могут поддерживать самоподобные волны, имеющие параболическую форму. Эти параболические симиляритоны асимптотически формируются в волоконных усилителях с постоянным коэффициентом усиления только в области нормальной дисперсии (в случае  $\beta_2 > 0$ ) [1–4]. Они привлекают большое внимание, особенно с точки зрения приложений в сверхбыстрой оптике и нелинейной волоконной оптике, и играют важную роль в лазерах ультракоротких импульсов. Современные волоконные лазеры, поддерживающие эволюцию симиляритона в пассивном или усиливающем сегменте волокна, обеспечивают гораздо более высокие характеристики энергии импульса и пиковой мощности, чем аналогичные лазеры предыдущих поколений. [5–10]. Недавно был обнаружен тип симиляритонов, известный как секанс-симиляритоны. Эти симиляритоны могут образовываться независимо от природы дисперсии волокна, но для их существования требуется изменение коэффициента усиления, или потери по длине волокна, или волокно,

дисперсия которого меняется по его длине [11]. Волокно с переменным коэффициентом усиления или потери по длине волокна может образовывать светлые или темные симиляритоны солитоноподобной формы [12–14].

В стандартном оптическом волокне с фиксированной нормальной дисперсией групповой скорости (ДГС) и без усиления также был продемонстрирован простой пассивный режим генерации подобных импульсов, называемых нелинейно-дисперсионным симиляритоном [15,16]. В дальнейшем, такие симиляритоны были использованы во многих исследованиях в качестве опорных импульсов, поскольку имели хорошо известную фазовую характеристику. В частности, использование этих нелинейно-дисперсионных симиляритонов позволило авторам работы [17] продемонстрировать существенные результаты в получении характеристик фемтосекундных импульсов методом спектральной интерферометрии.

В одной из наших работ было показано, что в области отрицательной дисперсии, при параметре нелинейности R < 1, в стандартном волокне может самоподобно развиваться импульс, профиль которого абсолютно не похож на секансгиперболическую функцию или параболу [18]. А также, при тех же условиях распространения импульса, экспериментально продемонстрирован солитонный эффект спектрального самосжатия [19,20], обеспечивающий спектральное сжатие с очень высоким коэффициентом и наблюдаемый при солитонном значении порядка N близко к 0.624 для исходных гауссовских импульсов и к 0.5 при секансгиперболических импульсах.

В данной работе продемонстрированы особенности формирования симиляритона нового типа при распространении в стандартном волокне в режиме со слабой нелинейностью и постоянной отрицательной дисперсией при  $N \le 0.6$  для исходных гауссовских импульсов.

#### 2. Аналитическая дискуссия и исследуемая ситуация

Распространение лазерного импульса в оптическом волокне, описываемое нелинейным уравнением Шрёдингера (НУШ) [1] с учетом нелинейной фазовой самомодуляции и линейной ДГС, записывается как:

$$i\frac{\partial u}{\partial \xi} + i\frac{\partial^2 u}{\partial \tau^2} + N^2 |u|^2 u = 0.$$
(1)

Здесь используются безразмерные переменные  $u = \psi/\sqrt{P_0}$ ,  $\xi = z/L_D$  и  $\tau = t/T_0$ . Функция  $\psi(z, t)$  представляет собой комплексную огибающую электрического поля, z – координата распространения, t – переменная времени,  $T_0$  – ширина импульса при 1/e,  $P_0$  – пиковая мощность начального импульса,  $L_D = T_0^2/|\beta_2|$ ,  $N = \sqrt{L_D/L_{NL}}$  и  $L_{NL} = 1/(\gamma P_0)$  – дисперсионная длина, порядок солитона и нелинейная длина соответственно,  $\gamma$  и  $\beta_2$  – коэффициенты нелинейности Керра и ДГС волокна. Распространение импульса наблюдается при аномальной дисперсии ( $\beta_2 < 0$ ). Полагая длительность импульса больше субпикосекундной, в расчетах не учитывались дисперсия высшего порядка и нелинейные эффекты. Для упрощения анализа использовалось двумерное пространство ( $\xi$ , N), с учетом того, что для пар нормированных параметров в любом случае найдется множество наборов физических параметров для уравнения, решенного с помощью  $\xi$  и N.

Исследованы две различные формы начального импульса: гауссовская:  $u_0 =$ 

 $\exp(-\tau^2/2)$  и секанс-гиперболическая:  $u_0 = \operatorname{sech}(\tau)$ .

Представлены ключевые особенности эволюции импульса в волокне с отрицательной дисперсией, описываемой НУШ, в режиме распространения с сильной ДГС:  $N \ll 1$ . В этом режиме, при отсутствии усиления и потерь, лазерный импульс в волокне уширяется, приобретает линейный чирп, и профиль импульса асимптотически принимает новую форму, независимую от исходной. При этом скорость формирования сильно зависит не только от длительности и амплитуды, но и от профиля исходного.

Рассматривался случай нормированного волокна с  $\xi = 2000$ , N = 0.6, но, в отличие от нашей предыдущей работы [18], в которой начальный импульс был секанс-гиперболическим, в настоящей статье расчеты проводились для импульсов с исходным гауссовым профилем. На рис.1 проиллюстрирована новая форма импульса на выходе волокна. Чтобы подчеркнуть форму выходного импульса, последний демонстрируется в сравнении с профилями гауссового и секанс-гиперболического импульсов.

В области отрицательной дисперсии в оптическом волокне эти симиляри-



Рис.1. Профиль (1) нового типа симиляритона после волокна длиной  $2000L_D$  в сравнении с (2) секанс-гиперболическим и (3) гауссовым импульсами с одинаковой пиковой мощностью и длительностью при 1/e.

тоны образуются при солитонном порядке N < 0.5. Другими словами, генерация этих импульсов требует слабой нелинейности и сильной дисперсии, для чего необходимо обеспечить согласование параметров импульса и волокна.

При секанс-гиперболических импульсах на входе волокна формирование происходит на расстоянии всего от нескольких десятков до нескольких сотен  $L_D$ . В случае гауссовых импульсов формирование происходит на гораздо больших расстояниях. Такой режим преобразования импульсов и генерации симиляритонов для исходных гауссовских импульсов иллюстрируется на рис.2 при N = 0.6.

Для демонстрации самоподобного распространения на рис.3 показано распространение гауссовских импульсов с длинами волокон от  $2000L_D$  до  $12000L_D$ , временные профили интенсивности импульса (рис.3а) и спектр (рис.3b).



Рис.2. Процесс формирования симиляритонов нового типа для гауссовского начального импульса. Динамика временных профилей (а) интенсивности и (b) спектра. Временные интенсивности нормированы на пиковых значениях.



Рис.3. Динамика временной (а) интенсивности и (b) спектра при распространении гауссовского импульса в волокне длиной от  $2000L_D$  до  $12000L_D$ .

Как видно, формы импульса и спектра функционально остаются неизменными, но импульс растягивается, а спектр продолжает сжиматься, что указывает на наличие дисперсии и нелинейного взаимодействия.

Новый самоподобный импульс приобретает линейный чирп (как показано на рис.4), благодаря чему форма спектра походит на профиль самого импульса.

Генерация такого импульса и последующая компенсация фазы может привести к синтезу спектрально-ограниченного импульса, который имеет либо спектр, либо импульс аналогичной формы. В первом случае происходит сжатие импульса при сохранении формы спектра, а во втором – получается более узкий спектр. Для достижения сжатия импульса в первом случае необходимо подавлять спектральный чирп, вызванный линейным дисперсионным взаимодействием, сохранив при этом форму спектра. Во втором случае необходимо подавлять временной чирп, вызванный нелинейным взаимодействием, при сохранении профиля импульса.

Для количественного описания формирования нового типа симиляритонов рассчитывался фактор качества формирования  $Q = P_{out}/(P_{in}F)$ , где  $P_{out}$  и  $P_{in}$  – пиковые мощности выходного и входного импульсов, F – коэффициент расширения импульса и определяется как отношение  $\Delta \tau_{in}/\Delta \tau_{out}$ , где  $\Delta \tau_{in}$  и  $\Delta \tau_{out}$  – это полная ширина соответствующих импульсов на половине максимума. Таким



образом, идеальный фактор качества Q равен 1. В описанном выше примере Q = 0.8, поскольку часть центральной энергии уходит в пьедестал.

Приведенные результаты хорошо согласуются с экспериментальными результатами работы [21], полученными в том же режиме распространения импульса в волокне. Они демонстрируют 2.4 кратное спектральное сжатие импульсов с энергией в несколько десятков пДж при слабонелинейном распространении в кремниевое фотонно-кристаллическое волокно с аномальной дисперсией и длительностью начальных импульсов 50 фс. Зарегистрированные ими сжатые спектры на выходе волокна и соответствующие восстановленные импульсы полностью повторяют профиль обнаруженного нами симилитона нового типа.

#### 3. Заключение

В результате численных исследований обнаружен новый тип симиляритонов, которые распространяются в стандартных одномодовых оптических волокнах в режиме слабой нелинейности и сильной дисперсии групповых скоростей. Выводы сделаны на основании анализа распространения импульса в оптическом волокне, описываемом НУШ с аномальной дисперсией. Показано, что новый тип импульсов по существу является точным асимптотическим решением НУШ без усиления, и этот режим преобразования импульсов и генерации симиляритонов формируется при значениях порядка солитона  $N \le 0.6$  для гауссовых импульсов и  $N \le 0.5$  для секанс-гиперболических импульсов. В отсутствие усиления и потерь, в данном режиме наблюдается уширение лазерного импульса в волокне с приобретением последним линейного чирпа. Причем, профиль импульса асимптотически принимает новую форму, независимую от исходной. Было показано, что скорость формирования сильно зависит не только от длительности и амплитуды, но и от профиля исходного импульса. Форма спектра самого симиляритона, благодаря линейности чирпа, в обязательном порядке определяется профилем сформированного импульса.

Полученные результаты находятся в полном согласии с аналогичными экспериментальными результатами других авторов.

Подобные симиляритоны могут найти множество применений в сверхбыстрой оптике и нелинейных волоконно-оптических системах.

## ЛИТЕРАТУРА

- 1. G.P. Agrawal. Nonlinear Fiber Optics. 6th ed., Elsevier, Rochester, USA, 2019.
- 2. M.E. Fermann, V.I. Kruglov, B.C. Thomsen, J.M. Dudley, J.D. Harvey. Phys. Rev. Lett., 84, 6010 (2000).
- 3. A. Chong, L.G. Wright, F.W. Wise. Reports on Progress in Physics, 78, 113901 (2015).
- S. Boscolo, S.K. Turitsyn, V.Y. Novokshenov, J.H.B. Nijhof. Theoretical and Mathematical Physics, 133, 1647 (2002).
- 5. N. Antar, İ. Bakırtaş, T.P. Horikis. Optik, 181, 449 (2019).
- 6. W.H. Renninger, A.Chong, F.W. Wise. Phys. Rev. A, 82, 822010 (2010).
- 7. B.G. Bale, S. Wabnitz. Opt. Lett., 35, 2466 (2010).
- 8. B. Oktem, C. Ulgudur, F.O. Ilday. Nature Photonics, 4, 307 (2010).
- 9. C. Aguergaray, D. Mechin, V.I. Kruglov, J.D. Harvey. Opt. Exp., 18, 8680 (2010).
- 10. Ch. Mei, F. Li, J. Yuan, Zh. Kang, X. Zhang, B. Yan, X. Sang, Q. Wu, X. Zhou, K. Zhong, L. Wang, K. Wang, Ch. Yu, P.K.A. Wai. Sci. Rep. 7, 3814 (2017).
- 11. T. Hirooka, M. Nakazawa. Opt. Lett., 29, 498 (2004).
- 12. V.I. Kruglov, J.D. Harvey. JOSA B, 23, 2541 (2006).
- 13. V.I. Kruglov, A.C. Peacock, J.D. Harvey, J.M. Dudley. JOSA B, 19, 461 (2002).
- 14. S.A. Ponomarenko, G.P. Agrawal. Opt. Exp., 15, 2693 (2007).
- A. Zeytunyan, G. Yesayan, L. Mouradian, P. Kockaert, P. Emplit, F. Louradour, A. Barthélémy. European Optical Society: Rapid Publications, 4, 09009 (2009).
- 16. S. Boscolo, C. Finot. Shaping Light in Nonlinear Optical Fibers. John Wiley & Sons Ltd, Chichester, Great Britain, 2017.
- 17. A. Zeytunyan, G. Yesayan, L. Mouradian, A. Kutuzyan. Opt. Comm., 552, 130059 (2024).
- A. Kutuzyan, V. Avetisyan, M. Kalashyan, M. Sukiasyan. Formation of a new type of self-similar pulses in optical fibers with anomalous dispersion. Frontiers in Optics + Laser Science, Technical Digest, JTu4B.32, USA, (2022).
- H. Toneyan, M. Sukiasyan, V. Avetisyan, A. Kutuzyan, A. Yeremyan, L. Mouradian. Solitonic Self-Spectral Compression of Noisy Supercontinuum Radiation. Frontiers in Optics + Laser Science, Technical Digest, JW4A.44, USA, (2016).
- 20. M. Sukiasyan, V. Avetisyan, A. Kutuzyan. Photonics, 10, 1207 (2023).
- 21. D.A. Sidorov-Biryukov, A. Fernandez, L. Zhu, A. Pugžlys, E.E. Serebryannikov, A. Baltuška, A.M. Zheltikov, Opt. Exp., 16, 2502 (2008).

## GENERATION OF A NEW TYPE OF SIMILARITONS IN OPTICAL FIBERS

### A. KUTUZYAN, V. AVETISYAN, M. SUKIASYAN

Based on a detailed numerical analysis and comparison with experimental observations, a nonlinear process of the generation of a new type of similaritons in fibers is presented in the region of negative dispersion. These similaritons are needle-like in shape with a sharp top and a large base and are formed in passive single-mode optical fibers with weak nonlinearity and strong group velocity dispersion. Consistent boundary conditions are found for the parameters of the input pulse and the characteristics of the optical fiber under which such self-similarly propagating pulses are generated.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.57–60 (2024) DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-57

# NOVEL PREDICTION USING TB-mBJ OF ELECTRONIC PROPERTIES, MAGNETIC EXCHANGE COUPLINGS, AND HALF-METALLICITY IN CrCaSe MATERIALS<sup>†</sup>

H.R. SAHRAOUI<sup>1</sup>, B. DOUMI<sup>2,3\*</sup>, A. MOKADDEM<sup>4,5\*\*</sup>, D. BENSAID<sup>6</sup>, M. BOUTALEB<sup>7</sup>, A. TADJER<sup>8</sup>, A. YAKOUBI<sup>3</sup>, A. SAYEDE<sup>9</sup>

<sup>1</sup>Laboratory of Physico-Chemical Studies, University of Saida - Dr. Moulay Tahar, Algeria
<sup>2</sup>Faculty of Sciences, Department of Physics, University of Saida - Dr. Moulay Tahar, Algeria
<sup>3</sup>Laboratoire d'étude des Matériaux & Instrumentations Optiques, Djillali Liabès University of Sidi Bel-Abbes, Sidi Bel-Abbes, Algeria
<sup>4</sup>University Center of El-Bayadh, El-Bayadh, Algeria
<sup>5</sup>Instrumentation and Advanced Materials Laboratory, University Center of El-Bayadh, Algeria
<sup>6</sup>Electrical Engineering Faculty, Djillali Liabes University of Sidi Bel Abbes, Algeria
<sup>7</sup>Faculty of Sciences, Department of Chemistry, University of Saida – Dr. Moulay Tahar, Algeria
<sup>8</sup>Physics Department, Djillali Liabès University of Sidi Bel Abbes, Algeria
<sup>9</sup>Unité de Catalyse et Chimie du Solide (UCCS), UMR CNRS 8181, Faculté des Sciences, Université d'Artois, Rue Jean Souvraz, SP 18, 62307 Lens, France

> \*e-mail: bendouma.doumi@univ-saida.dz \*\*e-mail: mokaddem.allel@gmail.com

(Поступила в редакцию 3 января 2023 г.)

In this study, we have performed investigations on the structural stability, electronic band structures, magnetic exchange couplings, and half-metallic performance of  $Cr_xCa_{1-x}Se$  materials using computational methods of density functional theory via GGA-WC, GGA-PBE and, TB-mBJ exchange-correlation potentials. The  $Cr_xCa_{1-x}Se$  compounds are thermodynamically stable and synthesizable owing to their negative formation energies. The structural parameters of  $Cr_xCa_{1-x}Se$  with GGA-WC and GGA-PBE approximations appear to be in excellent concordance compared to the experimental data and recent theoretical calculations. According to GGA-PBE and TB-mBJ calculations, the  $Cr_xCa_{1-x}Se$  compounds revealed integral magnetic moments and a half-metallic behavior with better half-metallic gaps, and spin-polarization of 100%. The  $Cr_xCa_{1-x}Se$  alloys appear to be better materials for use in spintronic devices.

# ЛИТЕРАТУРА

 B.A. Davis, B. Chakraborty, N. Kalarikkal, L. M. Ramaniah. Journal of Magnetism and Magnetic Materials 502, 166503 (2020).

<sup>&</sup>lt;sup>+</sup> Полная версия статьи публикуется в английской версии журнала (Journal of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences), 2024, Vol. 59, No. 1).

- T. Dietl, o. H. Ohno, a. F. Matsukura, J. Cibert, e. D. Ferrand. Science, 287(5455), 1019 (2000).
- 3. C. Senthilkumar. Nano-Struct. Nano-Objects, 35, 101021 (2023).
- S. Wolf, D. Awschalom, R. Buhrman, J. Daughton, v. S. von Molnár, M. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, D. Treger. Science, 294(5546), 1488 (2001).
- 5. R. K. Shivade, A. Kundu, B. Chakraborty. Chemical Physics Letters, 762, 138075 (2021).
- C.P. Perdomo, D.F. Almeida, I.C. Cancellieri, L.A. Garcia, A.L. Cardoso, R.F. Gunnewiek. Materials Chemistry and Physics, 307, 128051 (2023).
- 7. J. Kennedy, G.V. Williams, P.P. Murmu, B.J. Ruck. Physical Review B, 88(21), 214423 (2013).
- P. Murmu, J. Kennedy, B. Ruck, S. Rubanov. Electronic Materials Letters, 11, 998 (2015).
- S. Ahmed, X. Ding, N. Bao, P. Bian, R. Zheng, Y. Wang, P. P. Murmu, J. V. Kennedy, R. Liu, H. Fan. Chemistry of Materials, 29(21), 9066 (2017).
- S. Ahmed, X.-Y. Carl Cui, X. Ding, P. P. Murmu, N. Bao, X. Geng, S. Xi, R. Liu, J. Kennedy, T. Wu. ACS Applied Materials & Interfaces, 12(52), 58140 (2020).
- X. Mi, J. Pan, Y. Zhang, Y. Liu, G. Mu, P. Yang, P. Qin, F. Huang. Materials Science in Semiconductor Processing, 165, 107652 (2023).
- 12. T. Dietl. Nat. Mater., 9(12), 965 (2010).
- P. Cervantes, Q. Williams, M. Cote, M. Rohlfing, M.L. Cohen, S.G. Louie. Physical Review B, 58(15), 9793 (1998).
- 14. R. Bhattacharjee, S. Chattopadhyaya. Solid State Sci., 71, 92 (2017).
- 15. S. Hakamata, M. Ehara, H. Kominami, Y. Nakanishi, Y. Hatanaka. Applied surface science, 244(1-4), 469 (2005).
- B. Debnath, U. Sarkar, M. Debbarma, R. Bhattacharjee, S. Chattopadhyaya. Journal of Solid State Chemistry, 258, 358 (2018).
- 17. K. Kholiya, S. Verma, K. Pandey, B. Gupta. Physica B: Condensed Matter, 405(12), 2683 (2010).
- 18. H. Zimmer, H. Winzen, K. Syassen. Physical Review B, 32(6), 4066 (1985).
- 19. K. Syassen. Physica B+C, 139, 277 (1986).
- 20. H. Luo, R. G. Greene, K. Ghandehari, T. Li, A. L. Ruoff. Physical review B, 50(22), 16232 (1994).
- 21. P. Cortona, P. Masri. Journal of Physics: Condensed Matter, 10(40), 8947 (1998).
- 22. P. K. Jha, S. P. Sanyal. Physica status solidi (b), 212(2), 241 (1999).
- B. Arya, M. Aynyas, S.P. Sanyal. Journal of optoelectronics and advanced materials, 10(6), 1311 (2008).
- A. Shaukat, Y. Saeed, N. Ikram, H. Akbarzadeh. The European Physical Journal B, 62, 439 (2008).
- D. Varshney, V. Rathore, R. Kinge, R. Singh. Journal of Alloys and Compounds, 484(1-2), 239 (2009).
- 26. M.M.A. Salam. Results in Physics, 10, 934 (2018).
- O. Hamidane, A. Meddour, C. Bourouis. Journal of Superconductivity and Novel Magnetism, 32(7), 2155 (2019).

- O. Hamidane, A. Meddour, C. Bourouis. Journal of Electronic Materials, 48, 3276 (2019).
- 29. M.M. Obeid, H.R. Jappor, S.J. Edrees, M.M. Shukur, R. Khenata, Y. Mogulkoc. Journal of Molecular Graphics and Modelling, **89**, 22 (2019).
- N. Hamidane, H. Baaziz, K. Baddari, Z. Charifi. Materials Research Express, 6(11), 116112 (2019).
- A. Aiche, A. Tadjer, H.M. Ahmed Mazouz, B. Doumi, H. Khachai. Spin, 2020; World Scientific: p 2050013.
- Y. Daoudi, H.M.A. Mazouz, B. Lagoun, A. Benghia. Spin, 2021; World Scientific: p 2150026.
- W. Tanveer, Q. Mahmood, I. Mahmood, M.G.B. Ashiq, S. M. Ramay, A. Mahmood. Chemical Physics 532, 110690 (2020).
- Y. Daoudi, H.M.A. Mazouz, M.A. Fadla, A. Benghia. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 538, 168315 (2021).
- 35. Z. Wu, R.E. Cohen. Phys. Rev. B, 73(23), 235116 (2006).
- 36. J. P. Perdew, K. Burke, M. Ernzerhof. Phys. Rev. Lett., 77(18), 3865 (1996).
- 37. A.D. Becke, E.R. Johnson. The Journal of chemical physics, 124(22), 221101 (2006).
- 38. F. Tran, P. Blaha. Phys. Rev. Lett., 102(22), 226401 (2009).
- 39. P. Hohenberg, W. Kohn. Phys. Rev., 136(3B), B864 (1964).
- 40. W. Kohn, L. J. Sham. Phys. Rev., 140(4A), A1133 (1965).
- D.J. Singh, L. Nordstrom. Planewaves, Pseudopotentials, and the Lapw Method. Springer Science & Business Media: 2006.
- P. Giannozzi, S. De Gironcoli, P. Pavone, S. Baroni. Physical Review B, 43(9), 7231 (1991).
- 43. X. Gonze, C. Lee. Physical Review B, 55(16), 10355 (1997).
- 44. H.J. Monkhorst, J.D. Pack. Phys. Rev. B, 13(12), 5188 (1976).
- 45. J. Bai, J.-M. Raulot, Y. Zhang, C. Esling, X. Zhao, L. Zuo. Applied Physics Letters, 98(16), 164103 (2011).
- 46. B. Doumi, A. Mokaddem, A. Tadjer, A. Sayede. Chem. 8, 526 (2020).
- 47. B. Doumi, M. Boutaleb, A. Mokaddem, D. Bensaid, A. Tadjer, A. Sayede. Optical and Quantum Electronics, 54(11), 747 (2022).
- 48. J. Ma, V.I. Hegde, K. Munira, Y. Xie, S. Keshavarz, D.T. Mildebrath, C. Wolverton, A.W. Ghosh, W. Butler. Phys. Rev. B, 95(2), 024411 (2017).
- 49. J. Ma, J. He, D. Mazumdar, K. Munira, S. Keshavarz, T. Lovorn, C. Wolverton, A.W. Ghosh, W.H. Butler. Phys. Rev. B, 98(9), 094410 (2018).
- J.E. Saal, S. Kirklin, M. Aykol, B. Meredig, C. Wolverton. The Open Quantum Materials Database (Oqmd). JOM, 65, 1501 (2013).
- 51. S. Kirklin, J.E. Saal, B. Meredig, A. Thompson, J.W. Doak, M. Aykol, S. Rühl, C. Wolverton. npj Computational Materials, 1(1), 1 (2015).
- 52. X. Zeng, G. Niu, X. Wang, J. Jiang, L. Sui, Y. Zhang, A. Chen, M. Jin, K. Yuan, X. Yang. Materials Today Physics, 40, 101296 (2024).
- 53. A. Togo, I. Tanaka. Scripta Materialia. 108, 1 (2015).
- Z. Charifi, H. Baaziz, F.E.H. Hassan, N. Bouarissa. Journal of Physics: Condensed Matter, 17(26), 4083 (2005).

- 55. M. Slimani, H. Meradji, C. Sifi, S. Labidi, S. Ghemid, E. Hannech, F.E.H. Hassan. Journal of alloys and compounds, **485**(1-2), 642 (2009).
- 56. B. Debnath, M. Debbarma, D. Ghosh, S. Chanda, R. Bhattacharjee, S. Chattopadhyaya. International Journal of Modern Physics B, **33**(07), 1950042 (2019).
- B. Boutarfa, M. Gous, H. Meradji, A. Boumaza, R. Khenata. Computational Condensed Matter, 29, e00609 (2021).
- 58. K. Yao, G. Gao, Z. Liu, L. Zhu. Solid state communications, 133(5), 301 (2005).
- 59. G. Gao, K. Yao. Phys. Rev. B, 75, 174442 (2007).
- 60. Y. Kaneko, T. Koda. Journal of Crystal Growth, 86(1-4), 72 (1988).
- 61. R. Ali, S. Mohammad, H. Ullah, S. Khan, H. Uddin, M. Khan, N. Khan. Physica B: Condensed Matter, 410, 93 (2013).
- 62. C. Zener. Physical Review, 82(3), 403 (1951).
- 63. H. Akai. Physical Review Letters, 81(14), 3002 (1998).
- F. Goumrhar, L. Bahmad, O. Mounkachi, A. Benyoussef. Computational Condensed Matter 15, 15 (2018).
- H. Kizaki, K. Sato, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida. Phys. B: Condens, 376, 812 (2006).
- 66. S. Sanvito, P. Ordejón, N.A. Hill. Physical Review B, 63(16), 165206 (2001).
- H. Raebiger, A. Ayuela, R. Nieminen. Journal of Physics: Condensed Matter, 16(41), L457 (2004).

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.61–62 (2024)

DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-61

# EXPERIMENTAL OPTIMIZATION, DESIGN SYNTHESIS, AND UP-CONVERSION LUMINESCENCE PROPERTIES OF Y4GeO8: Er<sup>3+</sup>/Yb<sup>3+</sup> RED PHOSPHORS <sup>†</sup>

# S.Y. LIU1\*, D. GAO2, L. WANG1, W.B. SONG1, H. YIN1, S.T, WANG1, Y. ZHU1

<sup>1</sup>School of Intelligence and Electronic Engineering, Dalian Neusoft University of Information, Dalian, Liaoning, China <sup>2</sup>College of Science, Dalian Maritime University, Dalian, Liaoning, China

\*e-mail: liushengyi@neusoft.edu.cn

(Поступила в редакцию 20 января 2023 г.)

The Er<sup>3+</sup>/Yb<sup>3+</sup> co-doped Y<sub>4</sub>GeO<sub>8</sub> crystal powders were successfully synthesized using a high-temperature solid-phase method. The crystal structure of the obtained phosphors was confirmed to be pure Y<sub>4</sub>GeO<sub>8</sub> through X-ray diffraction (XRD) analysis. A regression equation correlating Er<sup>3+</sup>/Yb<sup>3+</sup> doping concentrations with luminescent intensity was established based on the optimized theoretical model derived from experimental design. The optimal concentrations of Er<sup>3+</sup> and Yb<sup>3+</sup> under 980 nm laser excitation were determined as 7.41% and 21.34%, respectively, while under 1550 nm laser excitation, the concentrations were 2.66% and 17.42%, respectively. The fluorescence emission spectra of the up-conversion samples were measured, revealing intense green and red emissions with peaks at 542, 546, and 654 nm under 980 nm excitation, and peaks at 546, 557, and 663 nm under 1550 nm excitation. These peaks correspond to transitions from <sup>2</sup>H<sub>11/2</sub> to <sup>4</sup>I<sub>15/2</sub>, <sup>4</sup>S<sub>3/2</sub> to <sup>4</sup>I<sub>15/2</sub>, and <sup>4</sup>F<sub>9/2</sub> to  ${}^{4}I_{15/2}$  energy levels. The relationship between up-conversion luminescence and laser operating current for the optimal samples under 980 nm and 1550 nm was investigated, uncovering that up-conversion luminescence occurs through both two-photon and three-photon processes. A detailed analysis and discussion of the up-conversion luminescence mechanisms were conducted. Furthermore, the relationship between up-conversion fluorescence and temperature for the optimal samples was studied, revealing excellent temperature-sensing characteristics under 980 nm and 1550 nm laser excitations. The calculated illumination region coordinates for the optimal samples under 980 nm and 1550 nm wavelength excitations were (0.5558, 0.4362) and (0.5256, 0.4687), respectively. The research highlights the potential of rare-earth ion-doped up-conversion luminescent materials for diverse anti-counterfeiting applications. In particular, the Y<sub>4</sub>GeO<sub>8</sub>: Yb<sup>3+</sup>/Er<sup>3+</sup> phosphors, incorporating a dualexcitation mechanism, enhance the security of anti-counterfeiting strategies in multifaceted scenarios. The study underscores the promising developments in this field.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Z. Lu, W. Zhang, J. Chen, S. Chen, J. Cao, H. Guo. J. Lumin., 232, 117857 (2021).

- 2. B. Xu, D. Tan, M. Guan, et al., J. Electrochem. Soc., 158, G203 (2011).
- 3. T. Minami, Y. Kobayashi, T. Miyata, M. Yamazaki. ISO4., 425, 35 (2003).

<sup>&</sup>lt;sup>†</sup> Полная версия статьи публикуется в английской версии журнала (Journal of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences), 2024, Vol. 59, No. 1).

- 4. J. Cho, J. Park, J. Kim, E. Schubert. Laser Photon. Rev., 11, 1600147 (2017).
- 5. H. Zhu, C. Lin, W. Luo. Nat. Commun., 5, 4312 (2014).
- 6. P. Dang, S. Liang, G. Li, Y. Wei, Z. Cheng. Chem. Eng. J., 337, 91 (2018).
- 7. H. Lian, M. Shang, A.A. Al Kheraif, J. Lin. Inorg. Chem., 57, 925 (2018).
- 8. Z. Wang, F. Yuan, X. Li, et al., Adv. Mater., 29, 1702910 (2017).
- 9. F. Hu, R. Wei, L. Chen, H. Guo. Ceram. Int., 47, 284 (2021).
- 10. J. Han, L. Li, M. Peng, et al., Chem. Mater., 29, 8412 (2017).
- 11. B. Xu, D. Tan, M. Guan, et al., J. Electrochem. Soc., 158, 203 (2011).
- 12. J. Yang, C. Zhang, C. Li, Y. Yu, J. Lin. Inorg. Chem., 47, 7262 (2008).
- 13. S. Zhou, N. Jiang, B. Zhu, et al., Adv. Funct. Mater., 18, 1407 (2008).
- 14. M. Hughes, T. Suzuki, Y. Ohishi. Opt. Mater., 32, 368 (2009).
- 15. J. Qiu, C. Zhu, T. Nakaya, et al., Appl. Phys. Lett., 79, 3567 (2001).
- 16. V.O. Sokolov, V.G. Plotnichenko, E.M. Dianov. Opt. Lett., 33, 1488 (2008).
- 17. E.M. Dianov. Quantum Electron., 40 283 (2010).
- 18. S. Venugopalan, K. Ramdas. Phys. Rev. B, 5, 4065 (1972).
- 19. Q. Zhao, J. Qiu, X. Jiang, C. Zhao, C. Zhu. Opt. Express, 12. 4035 (2004).
- 20. JK. Cao, WP. Chen, DK. Xu, et al., J Lumin., 194, 219 (2018).
- 21. J.S. Sun, L.L. Shi, S.W. Li, et al., Mater. Res. Bull., 80, 102 (2016).
- 22. J.S. Sun, S. Xu, S.W. Li, et al., Chin. Phys. B., 25, 063301 (2016).
- 23. J. Zhang, X.W. Li, G.B. Chen. Mater Chem Phys., 206, 40 (2018).
- 24. A. Pandey, S. Som, V. Kumar, at el., Sens Actuators B Chem., 202, 1305 (2014).
- 25. S. Wen, J. Zhou, K. Zheng, et al., Nat Commun., 9, 12 (2018).
- 26. B.S. Cao, Y.N. Bao, Y. Liu, et al., Chem Eng J., 385, 123906 (2020).
- 27. T. Minami, Y. Kubota, T. Miyata, et al., SID Int. Symp. Dig. Tech. Papers., 953 (1998).
- 28. Zhou, T.M., et al., J. Rare Earths., 33, 686 (2015).
- 29. A.H. Li, Z.R. Zheng, et al., J. Appl. Phys., 104, 063526 (2008).
- G.G. Demirkhanyan, V.G. Babajanyan, E.P. Kokanyan, et al., Opt. Materials, 29, 1107 (2007).
- 31. A.H. Li, Z.R. Zheng, et al., J. Appl. Phys., 104, 063526 (2008).
- 32. Y. Chen, J. Chen, Y. Tong, et al., J. of Rare Earth, 39, 1512 (2021).

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.63–70 (2024)

УДК 623.445;539.411.5 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-63

# МНОГОСЛОЙНАЯ ЭНЕРГОПОГЛОЩАЮЩАЯ ПОДЛОЖКА ДЛЯ ДВУХСЛОЙНЫХ ПРЕГРАД С ВНЕШНИМ КЕРАМИЧЕСКИМ СЛОЕМ

# П.Г. ПЕТРОСЯН<sup>\*</sup>, Л.Н. ГРИГОРЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

\*e-mail: ppetros@ysu.am

(Поступила в редакцию 14 февраля 2024 г.)

Предложен новый тип многослойной энергопоглощающей подложки, слои которой связаны между собой эластичным клеем. Показано, что при столкновении ударника с преградой часть кинетической энергии ударника расходуется на смещение отдельных слоев подложки друг относительно друга, что приводит к увеличению предельной скорости пробития преграды. Исследована зависимость предельной скорости пробития преграды от величины смещения слоев подложки, а также зависимость энергии, затрачиваемой на скольжение слоев, от площади деформированной части подложки. Показано, что при одинаковой энергии ударника глубина деформации предложенной подложки в 1.5 раза меньше по сравнению с подложками, в которых скольжение слоев отсутствует. Применение предложенной подложки в керамических защитных структурах позволяет существенно снизить поверхностную плотность конструкции.

### 1. Введение

В последние годы для защиты личного состава используются защитные конструкции, состоящие из наружного керамического слоя и внутренней энергопоглощающей подложки [1–3]. Эффективность таких конструкций в защите от высокоэнергетических и твердосплавных пуль обусловлена высокой твердостью используемого керамического материала. В качестве керамики в основном используются Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiC и B<sub>4</sub>C. Эти материалы, имеющие высокую твердость, при столкновении с ударником могут деформировать и разрушать его. Однако они достаточно хрупки и поэтому не могут быть надежным защитным слоем без энергопоглощающей подложки [1, 2].

Когда ударник сталкивается с керамическим слоем, ударник и керамический слой деформируются и частично разрушаются. Осколки разрушенного ударника и керамического слоя движутся к подложке с довольно большой кинетической энергией и, деформируя подложку, вбиваются в нее. В современных защитных конструкциях в качестве подложки используются материалы из высокопрочных синтетических волокон [1–6]. Их модуль упругости и предел прочности при растяжении очень высоки, а относительное удлинение волокна при разрыве невелико. Такими уникальными свойствами обладают арамидные волокно (кевлар) и сверхвысокомолекулярный полиэтилен [4–6]. Роль подложки заключается в пре-

образовании кинетической энергии осколков в потенциальную энергию деформации подложки. На деформацию подложки, как показывают расчеты, тратится около 40% кинетической энергии ударника [7, 8], следовательно, роль подложки в повышении баллистической устойчивости двухслойной преграды очень важна.

В работе [7] представлены различные модели и подходы для анализа высокоскоростного проникновения ударника через барьер, и приводятся аналитические выражения для расчета предельной скорости пробития двухслойных преград. В работе [8] при расчете предельной скорости пробития преграды учтены затраты энергии на разрушение ударника и керамики. Когда ударник встречается с керамическим слоем, проникновение ударника в керамику происходит в течение определенного периода времени (время задержки). За это время ударник деформируется и часть ударника разрушается. Деформируется также керамический слой, и в керамике образуется деформированный участок в виде усеченного конуса. После образования усеченного конуса неразрушенная часть ударника, усеченный конус и часть подложки, находящаяся под основанием конуса, двигаются с одинаковой скоростью. Кинетическая энергия движущихся частей, упомянутая выше, преобразуется в потенциальную энергию деформации подложки.

С учетом параметров, характеризующих механические свойства компонентов двухслойной преграды и ударника, в работе [8] получено следующее выражение для предельной скорости пробития преграды:

$$V = \sqrt{\frac{(M_{ud1} + M_k + m_p)E_n \varepsilon_p^2 \beta_s^2 V_p (1 - \lambda)}{2 M_{ud}^2}} + \sqrt{\frac{2}{M_{ud}} (\xi_{ud} \sigma_{ud} \varepsilon_{ud} \Delta V_{ud} + \frac{\xi_k \sigma}{2E} V_k)},$$
(1)

где  $M_{ud}$  – начальная масса ударника,  $M_{ud1}$  – масса ударника после разрушения при ударе,  $M_k$  и  $m_p$  – масса керамики и подложки,  $E_n$  – модуль упругости растяжения нитей,  $\varepsilon_p$  – предельная деформация подложки,  $\beta_s$  – увеличение диаметра деформируемой части подложки (эксперимент показывает, что диаметр деформируемой части подложки больше, чем диаметр большого основания усеченного конуса, который опирается на подложку),  $V_p$  – объём деформируемой части подложки,  $\lambda$  – объёмная доля связующего материла в подложке,  $\xi_{ud}$  – коэффициент, учитывающий неодномерность деформации ударника,  $\sigma_{ud}$  и  $\varepsilon_{ud}$  – предел прочности ударника и его предельная деформация,  $\Delta V_{ud}$  – объём разрушившейся части ударника,  $\xi_k$  – коэффициент неодномерности деформации керамики,  $\sigma$  – предел прочности керамики на сжатие,  $V_k$  – объём разрушенного керамического конуса, E – модуль упругости керамики.

Подложки, содержащие слои волокнистого материала, изготавливают с использованием прессов высокого давления. В многослойных композитных подложках различные волокнистые ткани склеиваются клеем на основе твердой смолы (чаще всего эпоксидной) [9]. В таких подложках отдельные слои подложки очень жестко связаны друг с другом, и при деформации отклонение (скольжение) отдельных ее слоев относительно друг друга незначительно.

Мы предлагаем модель энергопоглощающей подложки, в которой слои при деформации могут скользить относительно друг друга [10]. Настоящая работа посвящена исследованию энергопоглощающих свойств многослойной подложки нового типа, слои которой приклеены друг к другу эластичным клеем.

#### 2. Модель многослойной энергопоглощающей подложки

В многослойной подложке, слои которой приклеены друг к другу эластичным клеем, при столкновении ударника с преградой кинетическая энергия неразрушенной части ударника и усеченного керамического конуса расходуется не только на деформацию подложки, но и на смещение отдельных слоев относительно друг друга. В результате уменьшается величина деформации волокна и вероятность его обрыва, что в свою очередь приводит к увеличению предельной скорости пробития керамической преграды.

Для оценки энергии, затрачиваемой на смещение слоев при ударе, были приготовлены образцы, состоящие из трех слоев кевлара. Они были склеены между собой эластичным клеем «Наирит», который представляет собой раствор полихлоропренового каучука в органических растворителях. Два внешних слоя одним концом жестко прикреплены друг к другу, а средний слой прикреплен к внешним слоям клеем «Наирит», имеет свободный конец и может растягиваться за счет приложения внешней силы. С целью изучения зависимости коэффициента упругости образцов от площади склеиваемой поверхности были приготовлены образцы с различными склеенными площадями. Коэффициент упругости был определен с помощью устройства Лермонтова. Оно позволяет с высокой точностью измерить абсолютное удлинение испытуемого образца. На рис. 1 представлена зависимость силы упругости, возникшей в результате растяжения, от абсолютного удлинения для нескольких образцов с разными склеенными площадями. Как видно из рис. 1, эти зависимости в исследуемом диапазоне достаточно близки к линейными, что позволяет определить коэффициенты упругости образцов. Отметим, что приложенные силы были выбраны такими, что остаточная деформация практически отсутствовала.

На рис.2 представлена зависимость коэффициента упругости от склеенной площади образцов. Из этой зависимости был определен коэффициент упругости на единицу склеенной площади, который составляет  $k_0 = 3.47 \times 10^9$  H/м<sup>3</sup>.

Таким образом, если учесть, что отдельные слои в подложке не закреплены жестко и могут скользить друг относительно друга при деформации, и предста-



Рис.1. Зависимость силы упругости от абсолютного удлинения для образцов с разными площадями: *1* – 9.6, *2* – 19.2 и *3* – 28.8 см<sup>2</sup>.



Рис.2. Зависимость коэффициента упругости от площади образцов.

вить подложку как систему, составленную из параллельно соединенных «пружин» с одинаковыми коэффициентами упругости, то приведенный коэффициент упругости подложки можно определить по формуле  $k = k_0 SN$ , где S – площадь подложки, N – число слоев.

Затрачиваемая энергия на деформацию подложки, когда слои в подложке жёстко прикреплены, определяется по формуле [8]:

$$W = \frac{E_n \varepsilon_p^2 \beta_s^2 V_p(1-\lambda)}{2}.$$
 (2)

Если учесть скольжение отдельных слоев, то на скольжение затрачивается дополнительная энергия, которую в линейном приближении приблизительно можно оценить как  $k_0 SNx^2/2$ , где x – среднее отклонение слоев относительно друг друга. Учитывая затрачиваемую энергию на скольжение слоев для полной энергии деформации подложки, получаем:

$$W = \frac{E_n \varepsilon_p^2 \beta_s^2 V_p(1-\lambda)}{2} + \frac{k_0 SN}{2} x^2.$$
 (3)

С учетом вышеизложенного, формула (1) для предельной скорости пробития примет следующий вид:

$$V = \sqrt{\frac{(M_{ud1} + M_k + m_p)[E_n \varepsilon_p^2 \beta_s^2 V_p (1 - \lambda) + k_0 S N x^2]}{2M_{ud}^2}} + \sqrt{\frac{2}{M_{ud}} (\xi_{ud} \sigma_{ud} \varepsilon_{ud} \Delta V_{ud} + \frac{\xi_k \sigma^2}{2E} V_k)}.$$
 (4)

Важной характеристикой двухслойных защитных конструкций является поверхностная плотность *q* – масса защитной структуры единичной площади поверхности:

$$q = \rho_k h + \rho_p \delta,$$

где  $\rho_k$  – плотность керамики,  $\rho_p$  – плотность подложки, h – толщина керамического слоя,  $\delta$  – толщина подложки.

На рис. З представлена зависимость предельной скорости пробития от толщины подложки для поверхностной плотности преграды q = 50 кг/м<sup>2</sup> с керамическим слоем Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> при площади подложки  $S = 5 \times 10^{-2}$ м<sup>2</sup> и количестве слоёв в подложке N = 40. Величины, представленные в формуле (4), характеризующие механические свойства компонентов двухслойной преграды и ударника, соответствуют величинам, взятым в работе [8].



Рис.3. Зависимость предельной скорости пробития от толщины подложки: 1 - x = 0, без скольжения слоев в подложке; 2 - x = 0.5 и 3 - x = 1 мм.

Как видно, при x = 0 максимальное значение предельной скорости пробития составляет около 1750 м/с. Если считать, что среднее смещение отдельных слоев относительно друг друга составляет x = 0.5 мм, то максимальное значение предельной скорости пробития достигает значения 2000 м/с, что на 14% больше, чем в случае отсутствия скольжения слоев в подложке, а при x = 1 мм увеличение составляет 57%. Увеличение максимального значения предельной скорости пробития означает, что энергия, затрачиваемая на деформацию подложки, уменьшается, так как часть энергии затрачивается на скольжение слоев.

Для определения отношения толщины подложки к толщине керамического слоя при заданной поверхностной плотности преграды построена зависимость предельной скорости пробития от относительной толщины преграды  $h^* = h/(h + \delta)$  (рис. 4). Из полученных зависимостей можно определить, какая должна быть толщина керамического слоя, чтобы предельная скорость пробития приняла максимальное значение при данной поверхностной плотности защитной структуры. Когда скольжение между слоями отсутствует (x = 0), как видно из рис.4, предельная скорость пробития достигает своего максимального значения



Рис.4. Зависимость предельной скорости пробития от относительной толщины двухслойной преграды: 1 - x = 0; 2 - x = 0.5 и 3 - x = 1 мм.
при величине относительной толщины  $h^* = 0.462$ , при этом  $\delta/h = 1.16$ , т. е. толщина керамического слоя должна быть в 1.16 раза меньше толщины подложки. Когда x = 0.5 мм,  $h^* = 0.415$ ,  $\delta/h = 1.42$  толщина керамического слоя должна быть в 1.42 раза меньше толщины подложки, а при x = 1 мм,  $h^* = 0.338$ ,  $\delta/h = 1.96$  толщина керамического слоя должна быть почти в два раза меньше толщины подложки.

Для того, чтобы проверить достоверность наших рассуждений, были изготовлены преграды двух типов. В первой двухслойной преграде подложкой являлся прессованный кевлар, слои которого жестко прикреплены друг к другу, а во второй – слои кевлара были приклеены друг к другу эластичным клеем. В обоих случаях внешним керамическим слоем была корундовая керамика Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Толщина и вес подложек были одинаковы. В испытаниях использовался стальной ударник, характеристики которого сопоставимы с характеристиками стальных сердечников бронебойных пуль калибра 7.62 мм, кинетическая энергия которых составляет 3200–3500 Дж.

При толщине керамики 10 мм обе преграды выдерживают удар, однако, когда сравниваем площади послеударной деформации на обратной стороне подложки, то видим, что для подложек второго типа площадь деформации примерно на 20% больше, а глубина деформации в 1.5 раза меньше, чем у подложек первого типа. Большую площадь деформации в подложках второго типа мы связываем со скольжением слоев относительно друг друга, а меньшая глубина деформации указывает на то, что при ударе на деформацию подложки затрачивается значительно меньшая энергия, чем в случае отсутствия скольжения. Испытания также показывают, что при уменьшении толщины керамического слоя до 8 мм двухслойная преграда первого типа пробивается, а преграда второго типа, где слои скреплены эластичным клеем, не пробивается.

Если оценить энергию, затрачиваемую на деформацию подложки по формуле (2), она составляет примерно 1260 Дж, а энергия, затрачиваемая на скольжение слоёв в подложках с площадью  $S = 5 \times 10^{-2} \text{ m}^2$  и количеством слоев N =40, составляет примерно 870 Дж при среднем отклонении слоев в подложке x =0.5 мм. При проведении оценок предполагалось, что коэффициент упругости постоянен при таких отклонениях слоев в подложке. Столь большое значение энергии получается в том случае, если слои в подложке смещены друг относительно друга по всей поверхности. При оценке энергии, затрачиваемой на скольжение слоев, скорее всего, следует брать не всю площадь подложки, а только площадь деформированной части подложки. Экспериментально показано, что деформированная часть в противоположной стороне подложки представляет собой полусферу диаметром около 10 см.

На рис.5 представлена зависимость  $W/W_0$  от  $S/S_0$ , где W – энергия, затрачиваемая на скольжение слоев в подложке,  $W_0$  – полная энергия деформации при отсутствии скольжения слоев, S – площадь деформированной части подложки,  $S_0$  – полная площадь подложки. Эта зависимость позволяет рассчитать часть энергии, затрачиваемой на скольжение при разных площадях деформированной части подложки. Когда площадь деформированной части подложки равна 10% полной площади подложки при среднем отклонении слоев x = 0.8 мм, энергия, затрачиваемая на отклонение слоев, составляет 17% от общей энергии деформации подложки, а при 20% она достигает 35%.



Рис.5. Зависимость  $W/W_0$  от  $S/S_0$ : 1 - x = 0.4, 2 - x = 0.6, 3 - x = 0.8 и 4 - x = 1 мм.

Время взаимодействия ударника с преградой составляет несколько десятков микросекунд, поэтому при оценки энергии, затрачиваемой на отклонение слоев, следует использовать динамические параметры упругости подложки, которые могут существенно отличаться от соответствующих статических параметров [11]. Хотя сделанные оценки носят приблизительный характер, однако экспериментально установлено, что подложки из слоев, соединенных между собой эластичным клеем, могут обеспечить тот же класс защиты при меньшей толщине керамического слоя. Это позволяет существенно снизить вес защитных конструкций.

#### 3. Заключение

Предложена модель многослойной энергопоглощающей подложки для керамических защитных конструкций. Исследована энергопоглощающая способность предложенной подложки. Оценена энергия, затрачиваемая на смещение слоев при ударе в зависимости от площади деформированной части подложки и от величины среднего смещения слоев. Показано, что энергия, затрачиваемая на скольжение слоев может составлять от 10 до 40% от общей энергии деформации подложки, что приводит к увеличению предельной скорости пробития двухслойной керамической преграды. Защитные конструкции на основе предложенной подложки могут обеспечить тот же класс защиты при меньшей толщине керамического слоя.

#### ЛИТЕРАТУРА

- 1. А. Бхатнагар. Легкие баллистические материалы. Москва, Техносфера, 2011.
- 2. И.Ф. Кобилкин, В.В. Селиванов. Материалы и структуры легкой бронезащиты. Москва, Изд. МГТУ им. Н.Э.Баумана, 2014.
- 3. S. Daddamani, S.M. Kulkarni, S. Joladarashi, T.Kumar, A.Gurjar. International J. Lightweight Materials and Manufacture, 6, 450 (2023).
- 4. D.F. Adams, R.S. Zimmerman, H.W. Chang. SAMPE Journal, 21, 5, 44 (1985).
- 5. F. Slone, J. Nguyen. J. Composite Materials, 29, 16, 2092 (1995).
- 6. W. Walter, B. Scott. Proc. of the 22nd SAMPE Int. Tech. Conf., 1078–1091(1990).

- G. Ben-Dor, A. Dubinsky, T. Elperin. High Speed Penetration Dynamics: Engineering Models and Methods. Singapore, World Scientific Publ., 2013.
- 8. И.Ф. Кобылкин. Физика горения и взрыва, **53**, 4, 126 (2017).
- 9. S. Kumar, D. Gupta, I.Singh, A. Sharma. J. Reinf. Plast. Compos, 29, 2048 (2010).
- 10. L. Grigoryan, P. Petrosyan. Armenian patent № 806 Y. A Multilayer Composite Substrate for Armor Plates and a Method for its Fabrication, (2023).
- 11. А. Слуцкер, О. Мирзоев. ФТТ, **38**, 5, 1547 (1996).

#### ԿԵՐԱՄԻԿԱԿԱՆ ՊԱՇՏՊԱՆԻՉ ԿԱՌՈԻՑՎԱԾՔՆԵՐԻ ՀԱՄԱՐ ԲԱԶՄԱՇԵՐՏ ԷՆԵՐԳԱԿԼԱՆԻՉ ՏԱԿԴԻՐ

#### Պ.Գ.ՊԵՏՐՈՍՅԱՆ, Լ.Ն. ԳՐԻԳՈՐՅԱՆ

Առաջարկվել է նոր տեսակի բազմաշերտ էներգակլանիչ տակդիր, որի շերտերը իրար են միացված առաձգական սոսինձով։ Ցույց է տրված, որ երբ հարվածող գնդակը բախվում է պաշտպանիչ կառուցվածքին նրա կինետիկ էներգիայի մի մասը ծախսվում է տակդիրի առանձին շերտերի միմյանց նկատմամբ շեղման վրա, ինչի հետևանքով մեծանում է պաշտպանիչ կառուցվածքի ներթափանցման առավելագույն արագությունը։ Ուսումնասիրվել է ներթափանցման առավելագույն արագության կախվածությունը տակդիրում շերտերի շեղման մեծությունից, ինչպես նաև շերտերի սահքի վրա ծախսված էներգիայի կախվածությունը տակդիրի դեֆորմացված մասի մակերեսից։ Ցույց է տրված, որ հարվածող գնդակի միննույն էներգիայի դեպքում մեր կողմից առաջարկված տակդիրի դեֆորմացիայի խորությունը 1,5 անգամ փոքր է, քան այն տակդիրինը, որում շերտերի սահքը բացակայում է։ Առաջարկվող տակդիրի օգտագործումը կերամիկական պաշտպանիչ կառույցներում կարող է զգալիորեն նվազեցնել կառուցվածքի մակերևույթային խտությունը։

#### MULTILAYER ENERGY ABSORBING SUBSTRATE FOR TWO-LAYER BARRIERS WITH AN EXTERNAL CERAMIC LAYER

#### P.G. PETROSYAN, L.N. GRIGORYAN

A new type of multilayer energy-absorbing substrate has been proposed, the layers of which are connected with each other by elastic glue. It is shown that when the impactor collides with an obstacle, part of the kinetic energy of the impactor is spent on the displacement of separate layers of the substrate relative to each other, which leads to an increase in the maximum velocity of penetration of the barrier. The dependence of the maximum velocity of penetration of the substrate layers, as well as the dependence of the energy spent on sliding layers on the area of the deformed part of the substrate, have been studied. It is shown that, at the same impact energy, the depth of deformation of the proposed substrate is 1.5 times less than that of substrates in which the sliding of layers is absent. The use of the proposed substrate in ceramic protective structures allows to significantly reduce the surface density of the structure.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.71–78 (2024) УДК 535.015 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-71

# СМАЧИВАЕМОСТЬ СЛОЕВ ЧЕРНОГО КРЕМНИЯ, СФОРМИРОВАННЫХ РАЗЛИЧНЫМИ МЕТОДАМИ

Г.Е. АЙВАЗЯН<sup>1\*</sup>, А.А. ВАРДАНЯН<sup>1</sup>, А.В. СЕМЧЕНКО<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Национальный политехнический университет Армении, Ереван, Армения <sup>2</sup>Гомельский государственный университет имени Франциска Скорины, Гомель, Беларусь

\*e-mail: agagarm@gmail.com

(Поступила в редакцию 31 января 2024 г.)

Исследована смачиваемость слоев черного кремния (b-Si), сформированных методами реактивного ионного травления, металл-стимулированного химического травления и лазерно-индуцированного травления. Определены краевые углы смачивания изготовленных образцов деионизованной водой, глицерином, дийодметаном и этиленгликолом. Показано, что поверхностная пленка окисла кремния и коэффициент увеличения площади слоев b-Si оказывают существенное влияние на их смачиваемость, варьируя от гидрофильных к гидрофобным свойствам.

#### 1. Введение

Черный кремний (b-Si) представляет собой приповерхностный слой кристаллического Si, состоящий из массива плотноупакованных неровностей микро- и наноразмеров. Этот материал обладает уникальными оптическими и электронными свойствами, что делает его перспективным для применения в различных областях, включая интегральные схемы, фотодетекторы и газовые сенсоры [1–4]. В последнее время b-Si активно исследуется в качестве антиотражающих слоев для однопереходных [5, 6] и тандемных [7, 8] солнечных элементов.

Формирование слоев b-Si осуществляется различными методами, каждый из которых направлен на достижение определенных свойств. Наиболее успешными и широко используемыми методами являются реактивное ионное травление (reactive ion etching, RIE), металл-стимулированное химическое травление (metal-assisted chemical etching, MACE) и лазерно-индуцированное травление (laser-induced etching, LIE) [9–12].

Смачиваемость — важнейшее свойство, которое описывает взаимодействие между твердой поверхностью, такой как Si, и жидкостью. Его часто определяют количественно по краевому углу смачивания ( $\theta$ ), образующемуся между каплей жидкости и твердой поверхностью. В зависимости от  $\theta$  смачиваемость поверхности можно разделить на две категории: гидрофильная (когда  $\theta < 90^\circ$ ) и гидрофобная (когда  $\theta > 90^\circ$ ), а различная смачиваемость может удовлетворить различные практические потребности. На смачиваемость могут влиять многие факторы, в том числе текстура поверхности [13, 14].

Хотя имеется обширное количество исследований оптических и электронных свойств слоя b-Si, поведение смачивания этой микро- и нанотекстурированной поверхности остается малоизученным. Более того, в некоторых работах отмечается ее гидрофильность [8, 15, 16], в то время как в других — гидрофобность и супергидрофобность ( $\theta > 150^\circ$ ) [10, 11, 17]. Эта ситуация объясняется различием морфологии и химического состава слоев b-Si, полученных различными методами [2, 12]. Кроме того, нередко измерение угла смачивания слоев b-Si проводилось после функционализации поверхности с использованием гидрофобизирующих агентов или пленок сублимирующихся материалов [17, 18]. Следует также отметить, что исследования смачиваемости, в основном, ограничены водой, между тем часто на практике слои b-Si покрываются другими жидкостями, например, при пассивации однопереходных солнечных элементов [19].

В связи с вышеизложенным, целью настоящей работы являются изучение и сравнительный анализ смачиваемости слоев b-Si, сформированных методами RIE, LIE и MACE, во взаимодействии с различными жидкостями.

#### 2. Экспериментальная часть

В качестве исходных использовались двусторонне полированные пластины монокристаллического Si p-типа проводимости (легирующая примесь – бор) с удельным сопротивлением 3.0 Ом см с ориентацией поверхности (100).

Слои RIE b-Si были сформированы в газовой смеси SF<sub>6</sub>/O<sub>2</sub> со скоростью потока 75/40 см<sup>3</sup>/мин в течение 10 мин. Слои MACE b-Si создавались в два этапа: на первом этапе пластины погружались в смесь растворов HF(49%):H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>(30%): H<sub>2</sub>O (108:13.2:436 об%) и 0.38 ммоль/л нитрата серебра при комнатной температуре на 60 с. На втором этапе пластины с осажденными наночастицами серебра помещались в раствор HF:H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>:H<sub>2</sub>O (5:2:54 об%) на 120 с. Затем наночастицы серебра удалялись путем погружения образцов в концентрированную HNO<sub>3</sub> при комнатной температуре на 15 мин. Слои LIE b-Si формировались путем облучения пластин в воздухе фемтосекундным лазером (длина волны 520 нм, длительность импульса 320 фс, мощность света 11 Вт, частота следования 417 кГц). Лазерные импульсы сфокусировались в области диаметром 55 мкм при плотности энергии 11.4 кДж/м<sup>2</sup>. После формирования слоев b-Si все образцы подвергались стандартной отмывке в перекисно-аммиачных и кислото-перекисных растворах. Более подробное описание процессов формирования слоев b-Si представлено в работе [12].

Исследование морфологии полученных образцов проводилось с использованием сканирующего электронного микроскопа (SEM) Hitachi S-4800. На основе SEM микрофотографий определяли среднюю высоту (h), диаметр (d) и периодичность (t) неровностей, а по ним оценили коэффициент увеличения поверхности ( $\Omega$ ) как отношение площади верхней поверхности текстуры к проецируемой площади. Атомный состав образцов анализировался методом энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (EDX) на спектрометре Bruker QUANTAX 200. Смачиваемость образцов характеризовалась методом сидячей капли по значению угла смачивания ( $\theta$ ) капли жидкости объемом 1 мкл на поверхности образцов с использованием фотоизображений. Для оценки углов смачивания использовалась программа ImageJ с дополнительным плагином DropSnake. В данном плагине кривая, аппроксимирующая углы, проводилась в соответствии с условием минимизации энергии, вычисленной из уравнения Лапласа для капли, лежащей на поверхности. В качестве тестовых жидкостей использовались деионизованная вода, глицерин, дийодметан и этиленгликоль. Значения угла смачивания измерялись на пяти различных участках поверхности каждого экспериментального образца.

#### 3. Результаты и их обсуждение

На рис.1 представлены типичные SEM микрофотографии (вид сверху и поперечное сечение) слоев RIE, LIE и MACE b-Si. Там же на вставках показаны соответствующие EDX карты распределения химических элементов. В табл.1 приведен количественный примесный состав экспериментальных образцов.



Рис.1. SEM микрофотографии (левая колонна – вид сверху, правая колонна – поперечное сечение) слоев RIE (a, b), LIE (c, d) и MACE (e, f) b-Si. На вставках показаны соответствующие EDX карты распределения химических элементов.

Из представленных данных следует, что все образцы демонстрируют случайное распределение неровностей разного размера и формы. По примесному составу основными элементами являются Si и кислород, при этом концентрация кислорода быстро снижается по толщине слоя b-Si. В случае LIE b-Si также наблюдается углерод с общей концентрацией 6.2 ат%. Для остальных возможных побочных элементов (например, бор из исходной пластины или азот из воздуха) обнаружен лишь очень слабый сигнал, что позволяет предположить, что их концентрации ниже предела обнаружения метода EDX (1 ат%).

Метод / Элемент	Si	0	С
RIE	96.53	3.47	_
MACE	96.42	3.48	_
LIE	71.05	22.74	6.21

Табл.1. Количественный примесный состав образцов (ат%)

Слой МАСЕ b-Si в основном состоит из коротких наноигл усеченной конической формы с средней высотой h = 470 нм, диаметром d = 190 нм, периодичностью t = 110 нм и коэффициентом увеличения площади  $\Omega = 4.12$ . Также наблюдаются отдельные длинные наностержни (h = 980 нм), образование которых связано с двухэтапным характером травления. Слой RIE b-Si в большей степени характеризуется плотноупакованными конусообразными наноиглами с h = 1020 нм, d = 180 нм, t = 100 нм и  $\Omega = 4.18$ . Содержание кислорода в МАСЕ и RIE b-Si составляет менее 3.5 ат%. Значительная концентрация кислорода во многом обусловлена естественным окислением Si. Отсутствие наночастиц серебра в слое MACE b-Si указывает на то, что они были полностью удалены концентрированным раствором HNO<sub>3</sub>. LIE процесс приводит к формированию более крупных и затупленных пирамидообразных микроигл с h = 4.8 мкм, d = 1.5мкм, t = 4.1 мкм и  $\Omega = 1.66$ . Неровности покрыты шапкой из наночастиц с концентрацией кислорода 22.7 ат%. Богатый кислородом слой, скорее всего, представляет собой пленка SiO<sub>x</sub> (1.5 < x < 2) и обусловлен плавлением Si, нагретого лазерными импульсами сверхвысокой пиковой мощности.

На рис.2 приведены данные по изучению краевых углов смачивания ( $\theta$ ) деионизованной водой образцов RIE, LIE и MACE b-Si. Для сравнения, там же представлены результаты измерения для исходных полированных пластин (Planar). Видно, что исходная поверхность обладает гидрофильными свойствами с углом смачивания  $\theta = 71.2^{\circ}$ . В результате формирования b-Si получены как



Рис.2. Углы смачивания деионизованной водой исходных пластин и образцов RIE, LIE и MACE b-Si.

гидрофобные (МАСЕ и RIE), так и гидрофильные поверхности (LIE). RIE и МАСЕ b-Si показывают примерно одинаковые значения краевого угла смачивания  $\theta \sim 131^\circ$ , в то время как угол смачивания LIE b-Si составляет всего  $\theta = 62.8^\circ$ .

Кардинальное различие в смачиваемости образцов RIE и MACE b-Si по сравнению с исходной полированной поверхностью Si обусловлено особенностями морфологии слоев b-Si. Наличие наноигл способствует реализации «эффекта лотоса», а именно, в межиголных пространствах образуются воздушные подушки, что затрудняет их заполнение водой. Такое поведение характерно для материалов с микро- и нанотекстурированными поверхностями [13, 14].

Для LIE b-Si преобладающим является изменение химических и физических свойств поверхности из-за наличия пленки SiO<sub>x</sub>. Известно, что OH<sup>--</sup> функциональные гидроксильные группы могут образовывать водородные связи с молекулами воды, что способствует смачиванию [20, 21]. В подтверждение сказанному, на рис.3 представлены SEM микрофотографии боковой поверхности микроигл и капель воды на поверхности LIE b-Si до и после удаления пленки SiO<sub>x</sub> в растворе HF:HNO<sub>3</sub>:H<sub>2</sub>O (1:2:2, oб%) в течение 3 с. Видно, что после удаления окисла поверхность LIE b-Si превращается из гидрофильной ( $\theta = 62.8^{\circ}$ ) в гидрофобную ( $\theta = 116.2^{\circ}$ ), однако последнее значение меньше величин углов смачивания RIE и MACE b-Si.

Смачиваемость твердой поверхности с микро- и нанотекстурами обычно описывают двумя моделями: Венцеля (Wenzel) и Кэсси–Бакстера (Cassie–Baxter) [13, 14]. Первая модель рассматривает случай вытеснения жидкостью воздуха из массива микро- и наноонеровностей, а вторая – случай сохранения воздушной подушки. Согласно уравнению Венцеля, угол смачивания определяется соотношением:

$$\cos \theta = r \cos \theta_0, \tag{1}$$

где r — отношение фактической площади контакта капли с поверхностью к площади ее проекции,  $\theta_0$  — угол смачивания гладкой (без текстуры) поверхности.



Рис.3. SEM микрофотографии боковой поверхности микроигл (a, c) и капель воды (b, d) на поверхности LIE b-Si до (a, b) и после (c, d) удаления пленки SiO<sub>x</sub>.

По модели Кэсси–Бакстера, когда микро- и наноонеровности частично или полностью заполнены воздухом, угол смачивания определяется как

$$\cos \theta = f \left( \cos \theta_0 + 1 \right) - 1, \tag{2}$$

где *f* – доля площади поверхности, которая касается капли воды.

Приведенные соотношения справедливы, если характерные геометрические параметры микро- и нанотекстур значительно меньше диаметра контакта капли с поверхностью, что соответствует случаю слоя b-Si независимо от метода формирования. Как следует из выражений (1) и (2), условия реализации того или иного режима смачивания зависят от параметров r и f. С увеличением значений этих параметров режим смачивания переходит из гидрофильной в гидрофобную. Нетрудно заметить, что параметры r и f прямо пропорциональны коэффициенту увеличения площади Ω. Очевидно, чем больше Ω, тем меньше смачиваемая поверхность слоя b-Si. Именно этим объясняется наблюдаемое различие углов смачивания RIE и MACE b-Si от LIE b-Si без пленки SiOx. Кроме того, как указано в работе [8], для поверхностей с большими расстояниями между неровностями, что соответствует морфологии LIE b-Si, энергетически более выгодно состояние Венцеля. Напротив, плотноупакованные наноиглы RIE и МАСЕ b-Si способны хорошо удерживать капли воды на поверхности и не пропускать их внутрь наноструктурированного массива. В этом случае более вероятен предпочтительный для высокой гидрофобности режим Кэсси-Бакстера.

В табл.2 приведены значения поверхностных натяжений [22] и углов смачивания экспериментальных образцов этиленгликолем, глицерином (полярные жидкости) и дийодметаном (неполярная жидкость).

Как и ожидалось, низкое поверхностное натяжение использованных жидкостей по сравнению с водой, поверхностное натяжение которой составляет 72.8 мН/м [22], приводит к относительно хорошему смачиванию полированной поверхности Si. Для слоев b-Si углы смачивания этиленгликоля и глицерина увеличиваются, происходит инверсия смачивания и поверхность приобретает слабогидрофобные свойства. В случае дийодметана, наоборот, увеличивается гидрофильность b-Si. Скорее всего, это связано с неполярной природой этой жидкости со слабыми межмолекулярными связами.

Таким образом, смачиваемость b-Si варьируется в зависимости от коэффициента увеличения площади и химического состава поверхности, а также от свойств смачивающей жидкости. Гидрофильными и гидрофобными свойствами b-Si следует управлять с учетом конкретных областей применения. Так, гидрофобный b-Si обладает определенным потенциалом для самоочищения

Wer were over	Поверхностное	Угол смачивания, град			
жидкость	натяжение, мН/м	Planar	RIE	MACE	LIE*
Глицерин	63.3	65.2	121.4	119.7	91.8
Дийодметан	50.8	58.6	43.7	44.5	46.9
Этиленгликоль	48.2	51.2	118.1	113.4	86.6

Табл.2. Поверхностное натяжение и угол смачивания экспериментальных образцов тестовыми жидкостями

\* после удаления пленки SiO<sub>x</sub>

поверхностей однопереходных солнечных элементов и увеличения пропускаемости света [18]. Хорошая смачиваемость может облегчить заполнение межигольных пространств жидкостным прекурсором при синтезе перовскитных слоев, что является необходимым условием для обеспечения эффективности тандемных солнечных элементов с b-Si межслоем [7, 8].

#### 4. Заключение

Изучены структурные особенности и смачиваемость образцов RIE, МАСЕ и LIE b-Si с использованием SEM и EDX анализа, а также метода сидячей капли. Установлено, что морфология и примесный состав слоя b-Si существенно влияют на его смачиваемость различными жидкостями (водой, глицерином, дийодметаном и этиленгликолем). Слои RIE и MACE b-Si обладают гидрофобными свойствами, в то время как слой LIE b-Si имеет гидрофильные свойства из-за наличия поверхностной пленки SiO<sub>x</sub>. Полученные результаты объяснены моделями Венцеля и Кэсси–Бакстера. Гидрофильными и гидрофобными свойствами слоев b-Si следует управлять в зависимости от конкретных областей их применения.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке РА в рамках научных проектов № 21AG-2B011 и 21T-2D023. Г. Айвазян выражает благодарность Xiaolong Liu (Aalto University, Финляндия) за предоставление образцов МАСЕ и LIE b-Si.

#### ЛИТЕРАТУРА

- J. Soueiti, R. Sarieddine, H. Kadiri, A. Alhussein, G. Lerondel, R. Habchi. Nanoscale, 15, 4738 (2023).
- X. Liu, B. Radfar, K. Chen, O.E. Setälä, T.P. Pasanen, M. Yli-Koski, H. Savin, V. Vähänissi. IEEE Trans. on Semicond. Manuf., 35, 504 (2022).
- G. Ayvazyan, L. Hakhoyan, K. Ayvazyan, A. Semchenko. Phys. Status Solidi RRL, 17, 2300058 (2023).
- 4. G. Ayvazyan, L. Hakhoyan, K. Ayvazyan, A. Aghabekyan. Phys. Status Solidi A., 220, 2200793 (2023).
- 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).
- 6. J.Y.-H. Chai, B.T. Wong, S. Juodkazis. Mater. Today Energy, 18, 100539 (2020).
- 7. G. Ayvazyan, F. Gasparyan, V. Gasparian, Opt. Mater, 140, 113879 (2023).
- 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).
- 9. R.C. Muduli, M.K. Sahoo, P. Kale. Mater. Today: Proc., 62, 5917 (2022).
- 10. X. Yue, W. Liu, Y. Wang. Surf. Coatings Techn., 307, 278-286 (2016).
- 11. T. Baldacchini, J. E. Carey, M. Zhou, E. Mazur. Langmuir, 22, 4917 (2006).
- G. Ayvazyan, K. Ayvazyan, L. Hakhoyan, X. Liu, Phys. Status Solidi RRL, 18, 2300410 (2024).
- 13. M.N. MacGregor-Ramiasa, K. Vasilev. Adv. Mater. Interfaces, 4, 1700381 (2017).
- 14. J. Xu, L. Jia, C. Dang, Y. Ding, X. Liu. J. Molec. Liquids, 393, 12358 (2024).

- 15. Y.A. Peschenyuk, A.A. Semenov, E.Y. Gatapova. Exp. Fluids, 64, 1 (2023).
- 16. S. Han, R. Yang, C. Li, L. Yang. Appl. Sci., 9, 566 (2019).
- 17. A. Ressine, D. Finnskog, G. Marko-Varga, T. Laurell. Nanobiotechnol., 4, 18 (2008).
- X. Liu, J. Trosseille, A. Mongruel, F. Marty, P. Basset, J. Laurent, L. Royon, T. Cui, D. Beysens, T. Bourouina. iSci., 24, 102814, (2021).
- 19. R.S. Bonilla, B. Hoex, P. Hamer, P.R. Wilshaw. Phys. Status Solidi A., 214, 1700293 (2017).
- H.V. Asriyan, A.A. Shatveryan, V.M. Aroutiounian, F.V. Gasparyan, S.V. Melkonyan, Z.H. Mkhitharian. Proc. SPIE, 5846, 192 (2005).
- 21. S.J. Spencer, C.G. Deacon, G.T. Andrews. Silicon, 15, 5703 (2023).
- 22. L. Hołysz. J. Mater. Sci., 35, 6081 (2000).

#### ՏԱՐԲԵՐ ՄԵԹՈԴՆԵՐՈՎ ՁԵՎԱՎՈՐՎԱԾ ՍԵՎ ՍԻԼԻՑԻՈՒՄԻՑ ՇԵՐՏԵՐԻ ԹՐՋԵԼՈՒԹՅՈՒՆԸ

#### Գ.Ե. ԱՅՎԱՉՅԱՆ, Ա.Ա. ՎԱՐԴԱՆՅԱՆ, Ա.Վ. ՍԵՄՉԵՆԿՈ

Հետազոտվել է ռեակտիվ իոնային խածատման, մետաղով խթանմամբ քիմիական խածատման և լազերային խածատման մեթոդներով ձևավորված սև սիլիցիումի (b-Si) շերտերի թրջելիությունը։ Գնահատվել են պատրաստված նմուշների դեիոնացված ջրով, գլիցերինով, դիյոդմեթանով և էթիլենգլիկոլով թրջման հպակային անկյունները։ Ցույց է տրվել, որ սիլիցիումի օքսիդի մակերևութային թաղանթը և b-Si շերտերի մակերեսի մեծացման գործակիցը զգալի ազդեցություն ունեն թրջելիության վրա՝ ապահովելով հիդրոֆիլայինից մինչև հիդրոֆոբային հատկություններ։

#### WETTABILITY OF BLACK SILICON LAYERS FORMED BY DIFFERENT METHODS

#### G.Y. AYVAZYAN, A.A. VARDANYAN, A.V. SEMCHENKO

The wettability of black silicon (b-Si) layers formed by reactive ion etching, metalassisted chemical etching, and laser-induced etching has been studied. The wetting contact angles of the prepared samples with deionized water, glycerol, diiodomethane and ethylene glycol were determined. It has been shown that the silicon oxide surface film and the enlargement area factor of b-Si layers have a significant effect on their wettability, varying from hydrophilic to hydrophobic properties. Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.79–86 (2024) УДК 621.372 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-79

### АНАЛИЗ СМЕШИВАЕМОСТИ КОМПОНЕНТОВ В ТРОЙНОЙ МАТЕРИАЛЬНОЙ СИСТЕМЕ BN-Si-C

#### Л.С. ЕРАНЯН<sup>\*</sup>, А.В. МАРГАРЯН, К.М. ГАМБАРЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

\*e-mail: lyeranyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 29 марта 2024 г.)

Монокристаллический нитрид бора с кубической симметрией (с-BN) представляет собой сверхтвердый материал с широкой запрещенной зоной и со значительным потенциалом для применения при экстремальных температурах и давлениях. Тем не менее, его практическому использованию в технологии и материаловедении препятствуют две основные проблемы: (i) сложность производства высококачественных пленок с-BN и (ii) проблема эффективного n- и pлегирования его матрицы. Данное теоретическое исследование посвящено выявлению пределов растворимости кремния (Si) и углерода (C) в с-BN и нитриде бора типа вюрцит (WZ-BN) на основе приближения строго регулярного раствора. Эти элементы являются ключевыми кандидатами в качестве примесей п-типа в BN, что позволяет решить критическую проблему при реализации электроники на основе с-BN. Рассчитанные свободные энергии Гиббса бинарных смесей в интервале температур 800–3000 К указывают на то, что наличие нестабильных областей и, следовательно, областей несовместимости является преобладающей характеристикой этой системы. Анализ показывает, что на величину этих областей влияет не только температура, но и кристаллографическая структура. Результаты расчета предела растворимости Si в бинарной системе BN-Si хорошо согласуются с последними экспериментальными результатами. Представленные здесь результаты могут быть использованы при выращивании многокомпонентных объемных кристаллов, тонких эпитаксиальных пленок и наноструктур на основе твердых растворов BN-Si-C.

#### 1. Введение

Обладая самой большой шириной запрещенной зоны (6.1–6.4 эВ) среди нитридов группы IIIA, кубический нитрид бора (с-ВN) является перспективным материалом для различных применений благодаря своей сверхвысокой твердости, высокой теплопроводности, химической и термической стабильности, высокому полю пробоя и возможностям легирования [1–3]. Управление проводимостью с-BN имеет решающее значение для его успешного использования. Предыдущие экспериментальные попытки легирования с-BN примесями п-типа использовали кремний (Si), серу (S) и углерод (C) – в качестве потенциальных доноров, при этом Si продемонстрировал концентрации электронов до 10<sup>18</sup> см<sup>-3</sup> с энергией активации ~0,2 эВ [4, 5, 6]. С и Si проявляют амфотерное поведение в качестве примесей, поскольку они обладают способностью занимать узлы B-подрешетки и действовать как доноры, а также обладают потенциалом замещать атомы N в качестве акцепторов [7]. Одновременное введение атомов Si и C в BN позволяет эффективно изменять его механические, оптические и электрические свойства.

Эффективные примеси требуют высокой растворимости, низкой энергии образования, малой энергии ионизации и устойчивостью к компенсационным эффектам. Согласно теоретическим предсказаниям, более низкие энергии образования, связанные с дефектами замещения В-атомов, указывают на явное предпочтение мелких примесей, избирательно занимающих место В-атомов, а не N. Примечательно, что независимо от условий, благоприятствующих избытку бора или азота, энергия, необходимая для образования Si<sub>B</sub>, значительно ниже, чем у Si<sub>N</sub>, несмотря на амфотерную природу Si. Это несоответствие можно объяснить ковалентными радиусами участвующих атомов: Si (1.11 Å), B (0.84 Å), and N (0.71 Å). Значительные различия в атомных радиусах между атомами примеси и атомом азота приводят к повышенному уровню искажений, когда атом кремния заменяет атом азота по сравнению с заменой атома бора [8]. Мы также нашли некоторые экспериментальные подтверждения замещения бора атомами кремния [9, 10].

Изготовление электронных устройств на основе этих материалов сопряжено с определенными трудностями и ограничениями. Несовпадение постоянных решетки, различия в коэффициентах теплового расширения и кристаллических структурах могут привести к дефектам, вызванными деформациями, и снижению производительности устройства.

Следовательно, понимание стабильности и фазового поведения этой системы имеет решающее значение для создания материалов с желаемыми свойствами. Поэтому в этом исследовании мы изучили пределы растворимости Si и С в материальной системе BN-Si-C как для кубической, так и для вюрцитной фаз BN (ZB-BN и WZ-BN) и С (алмаз и лонсдейлит), в рамках модели строго регулярного раствора [11] в сочетании с моделью DLP (Delta Lattice Parameter) [12] для расчета энтальпий смешения полупроводниковых твердых растворов с точки зрения параметров решеток их составляющих компонент. Расчет, представленный в этом исследовании, также фокусируется на спинодальных точках, которые являются граничными точками между нестабильными и метастабильными областями бинарной кривой свободной энергии в зависимости от состава. Расчет спинодальных точек оказывается очень ценным для прогнозирования наличия и величины зоны несмешиваемости. Кроме того, мы оценили диапазон составов в системе BN-Si-C, который позволит получить твердый раствор с постоанной кристаллической структуры, согласованной с ВN. Наконец, определены области концентраций с положительными и отрицательными знаками несоответствия постоянных решетки, внутри которых могут быть синтезированы квантовые точки (КТ) и нанопоры.

#### 2. Метод расчета

Согласно модели строго регулярного раствора молярная свободная энергия Гиббса тройной материальной системы может быть представлена следующим уравнением [11]:

$$\Delta G(x, y) = \alpha_{BN-Si}(1 - x - y)x + \alpha_{Si-C}xy + \alpha_{BN-C}(1 - x - y)y + R\{x\ln x + y\ln y + (1 - x - y)\ln(1 - x - y)\},$$
(1)

где а — параметры псевдобинарного взаимодействия, полученные с помощью модели DLP, Т — абсолютная температура, а R — универсальная газовая постоянная. Разработанный для анализа кристаллов структуры сфалерита (ZB-Zinc Blende), DLP вычисляет параметр псевдобинарного взаимодействия  $a_{i-j}$  исключительно на основе постоянных решеток  $a_i$  и  $a_j$ . Для применения этого метода структуру вюрцита необходимо преобразовать в структуру сфалерита, согласно тому, что плоскость (0001) в структуре вюрцита соответствует плоскости (111) в структуре сфалерита. Набор постоянных решеток в структуре вюрцита *a* и *c* претерпевает трансформацию в эквивалентную постоянную решетки  $a_{eq}$  в структуре сфалерита [13], которую можно выразить как  $a_{eq} = \sqrt[3]{\sqrt{3}a^2c}$ . Постоянные решетки *a* и *c* структуры вюрцита, эквивалентная постоянная решетки  $a_{eq}$  для структуры сфалерита и расчетные значения параметров взаимодействия показаны в таблице 1.

Согласно модели DLP, параметр псевдобинарного взаимодействия можно рассчитать с помощью следующего уравнения:

Табл.1.Расчетные значения  $a_{eq}$  для BN и C со структурой вюрцита и параметры взаимодействия для бинарных систем ZB и WZ.

		Постоянная решетки (Å)			Параметр взаимодействия		
					$\alpha$ (kcal/mol)		
Компонент		BN	С	Si		ZB	34.9
Кубиче-	a (Å)	3.6155	3.567	5.431	α (BN-Si)	WZ	34.5
ская							
Вюрцит-	a-axis	2.55	2.479			ZB	0.4
ная	c-axis	4.22	4.17		α (BN-C)		0.4
Эквивалент	ZB (Å)	3.6223	3.5406			WZ	0.7

$$\alpha_{A-B} = 4K[\frac{1}{2}(a_A^{-2.5} + a_B^{-2.5}) - \left(\frac{a_A + a_B}{2}\right)^{-2.5}].$$
 (2)

Здесь постоянная К представляет собой связь между энтальпией атомизации и постоянной решетки. В наших расчетах мы использовали три разных значения для К ( $K_1 = 1.15 \cdot 10^7 cal/mol \cdot Å^{2.5}$  [14] для кубического BN – C,  $K_2 = 7 \cdot 10^6 cal/mol \cdot Å^{2.5}$  [13] для WZ – (BN – C),  $K_3 = 1.98 \cdot 10^6 cal/mol \cdot Å^{2.5}$  [15] для ZB-(BN-Si), WZ-(BN-Si) и Si-C), в зависимости от кристаллических структур и несоответствия решеток компонентов в бинарных системах.

#### 3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 показано изменение молярной свободной энергии Гиббса твердого раствора для бинарных систем с-(BN-Si) и WZ-(BN-Si) при различных температурах. Расчеты проводились с помощью формул (1) и (2). Область несмешиваемости существует при всех рассмотренных температурах, хотя максимум свободной энергии уменьшается с увеличением температуры. Область смешиваемости существует только вблизи BN-богатой части кривой (вставки на рис.1), где свободная энергия Гиббса уменьшается с увеличением концентрации Si. Согласно расчетам, критическая температура спинодального распада для данной



Рис.1. Зависимость молярной свободной энергии Гиббса от концентрации для ZB (a) и WZ (b) бинарных соединений BN-Si при различных температурах. В вставке показано уменьшение энергии Гиббса вблизи точки x = 0.

материальной системы превышает 8000К, что значительно превышает температуры плавления составляющих компонент. Аналогичные расчеты были проведены и для кубической бинарной системы Si-C [15], ZB BN-C и WZ BN-C. Хотя этот подход, из-за небольших различий в параметрах решетки, предсказывает полную растворимость твердых растворов ZB-BN/C и WZ-BN/C ниже температуры плавления, некоторые теоретические расчеты [16, 17] и экспериментальные данные [6] доказывают, что предел растворимости сохраняется даже при более высоких температурах (4500°C и более, что выше температуры плавления как алмаза, так и с-BN), что указывает на недостижимость полной смешиваемости в этих бинарных системах.

Равновесные фазовые составы, известные как бинодальные, связаны с минимумами свободной энергии и идентифицируются парами точек на кривой зависимости энергии Гиббса смеси от состава, которые имеют общие касательные. Области отрицательной кривизны  $\left(\frac{d^2G}{dx^2} < 0\right)$  возникают в точках перегиба кривой  $\left(\frac{d^2 G}{dx^2} = 0\right)$ , известные как спиноды (или спинодальные точки). В спинодальных областях гомогенный раствор неустойчив к микроскопическим флуктуациям состава, что приводит к спинодальному распаду [18]. Рассчитанные точки бинодали для бинарных систем ZB-BN/Si (a,b) и WZ-BN/Si (c,d) при различных температурах представлены на рис.2. Предел растворимости при 800К с ростом температуры смещается в сторону более высоких концентраций и достигает 0.3%  $(x=3 \cdot 10^{-3})$  при 3000К. Незначительная разница в пределе растворимости Si существует между структурами ZB-BN и WZ-BN при одинаковых условиях, что можно объяснить значениями параметров взаимодействия. Максимальная концентрация Si, при которой кубическая фаза остается неизменной, экспериментально была получена равной 3.3% [19, 20] с энергией активации 1.17 эВ. При более высоких концентрациях Si кубическая фаза может превратиться в гексагональный нитрид бора (h-BN) из-за большой деформации. Кроме того, содержание Si в образцах с-BN может снизиться более чем на 75% через несколько месяцев после изготовления [21]. Это означает, что легированный кремнием кристалл с-BN существует в нестабильном состоянии, и атомы Si, сконцентрированные вблизи поверхности с-BN, имеют тенденцию отделяться от кристалла для



Рис.2. Вычисленные точки бинодалей (увеличенные вблизи минимумов) для кривых зависимости молярной свободной энергии Гиббса от состава при температурах 800 К (а и с) и 3000 К (b и d).

достижения большей стабильности. Это наблюдение подкрепляет обоснованность нашей теоретической оценки предела растворимости кремния в с-BN, указывая на ее практическую значимость для изготовления стабильных твердых растворов BN-Si.

Зависимости точек бинодали и спинодали от температуры представлены на рис.3 в диапазоне температур от 800 К до 3000 К. Линия соответствует точкам спинодали, а точки бинодали представляют собой функцию четвертой степени. Вычисленные значения спинодальных точек позволяют предположить, что при определенных условиях метастабильный твердый раствор BN/Si будет



Рис.3. Зависимости точек бинодали и спинодали от температуры для систем ZB-BN/Si и WZ-BN/Si.

существовать в двухфазной области с содержанием Si до  $x \sim 0.1$  (10%), который, вероятно, подвергнется фазовому разделению после охлаждения, с параллельным фазовым превращением кубического BN в h-BN. Когда концентрация кремния увеличивается до 15.7 ат. %, кубическая фаза полностью исчезает [21].

Разница в постоянных решетки слоев внутри многослойных структур приводит к деградации устройства. Таким образом, в высокопроизводительных устройствах, содержащих двойные гетероструктуры или структуры с квантовыми ямами, предпочтительно, чтобы постоянные решетки последовательных слоев точно совпадали. Схемы концентрационных треугольников для одного моля квазитройной материальной системы BN-Si-C в модификациях ZB (а) и WZ (b) представлены на рис.4 (увеличенное изображение). Твердые растворы с составом вдоль сплошной линии M0N0 согласованы с решеткой подложки BN. Вычисленные значения концентраций для твердого раствора  $Si_xC_v$  (x + y = 1), постоянная решетки которого согласована с с-BN, следующие: x=0.026 (2.6%), у=0.974 (97.4%). Для получения структуры, согласованной по решетке с WZ-BN, содержание Si и C должно составлять: x=0.043 (4.3%) и y=0.957 (95.7%). Эллипсоидами обозначены области концентраций с положительными и отрицательными знаками несоответствия постоянных решетки. Пунктирными линиями отмечены составы с постоянными значениями несоответствия решетки, причем соответствующие значения х и у указаны для каждой строки в прилагаемой таблице. Величину рассогласования решеток в процентах рассчитывали по следующему уравнению:  $\varepsilon = (a_{layer} - a_{sub})/a_{sub} \cdot 100\%$ , где  $a_{layer}$  — постоянная решетки эпитаксиальной пленки, а *а<sub>sub</sub>* – постоянная решетки подложки. В областях твердых растворов с положительным и отрицательным значениями є методом роста Странского-Крастанова могут быть сформированы квантовые точки или нанопоры, соответственно.



Рис.4. Концентрационные треугольники квазитройной материальной системы BN-Si-C, увеличенные вблизи области, обогащенной углеродом. (а)-ZB-BN/Si/C, (b)-WZ-BN/Si/C.

#### 4. Заключения

Таким образом, мы продемонстрировали, как введение атомов Si и C в с-BN и WZ-BN создает области несмешиваемости в тройном твердом растворе BN-Si-С. Бинарный твердый раствор (BN)<sub>1-х</sub>Si<sub>х</sub> имеет значительную область несмешиваемости, что затрудняет получение BN n-типа с желаемым значением ширины запрещенной зоны. Полная смешиваемость в системе BN-Si может быть достигнута при содержании Si до 0.29% для с-BN и 0.32% для WZ-BN. Существует небольшая разница в пределе растворимости Si между кубической и вюрцитной структурами BN. В системе BN-С, несмотря на практически идентичную кристаллическую структуру и параметры решетки, предел полной растворимости сохраняется даже при 4500°C и более высоких температурах, что выше температуры плавления как алмаза, так и с-BN. Расчетные значения бинарных спинодальных точек позволяют предположить, что при определенных условиях твердый раствор  $(BN)_{1-x}Si_x$  с содержанием кремния до  $x \sim 0.1$  (10%) можно получить в метастабильной двухфазной области, которая после охлаждения подвергнется фазовому расслоению (на практике максимальная растворимость для кремния была получена 3.3% без фазового преобразования). Практически согласованные по решетке гетероструктуры с подложкой BN и эпитаксиальными слоями  $Si_xC_v$  (x + y = 1) могут быть выращены в соответствии с вычисленным значением x. Полученные значения для x и y в решетке твердого раствора  $Si_xC_y$ , согласованной с с-BN и WZ-BN, следующие: x = 0.026, y = 0.974 и x = 0.043, y =0.957, соответственно. Квантовые точки и нанопоры в материальной системе  $(BN)_{1-x}Si_xC_{\nu}$  могут быть созданы методом роста Странского-Крастанова в соответствии с необходимыми значениями несоответствия кристаллических решеток подложки и смачиваемого слоя.

Данное исследование было выполнено при финансовой поддержке Национальной Академии Наук Армении в рамках "Программы поддержки молодых ученых" под кодом "23YSSPS-5".

#### ЛИТЕРАТУРА

- J. Tsao, S. Chowdhury, M. Hollis, D. Jena, N. Johnson, K. Jones, R. Kaplar, S. Rajan, C.G. Van de Walle, E. Bellotti, et al., Adv. Electron. Mater. 4, 1600501 (2018). https://doi.org/10.1002/aelm.201600501
- D. Jena, R. Page, J. Casamento, P. Dang, J. Singhal, Z. Zhang, J. Wright, G. Khalsa, Y. Cho, H. G. Xing. Jpn. J. Appl. Phys., 58, SC0801 (2019). https://doi.org/10.7567/1347-4065/ab147b
- 3. X.W. Zhang. Thin Solid Films, 544, 2 (2013). https://doi.org/10.1016/j.tsf.2013.07.001
- 4. K. Hirama, Y. Taniyasu, H. Yamamoto, K. Kumakura. Appl. Phys. Lett. 116, 162104 (2020). https://doi.org/10.1063/1.5143791
- 5. M.E. Turiansky, D. Wickramaratne, J.L. Lyons, C.G. Van de Walle. Appl. Phys. Lett. 119, 162105 (2021), https://doi.org/10.1063/5.0069970
- 6. A. Haque, J. Narayan. ACS Appl. Electron. Mater. 3, 3, 1359, (2021), https://doi.org/10.1021/acsaelm.0c01130
- 7. X. Li, et al., Appl. Surf. Sci. 308, 31 (2014), http://dx.doi.org/10.1016/j.apsusc.2014.04.059
- 8. T. Joshi, P. Kumar, B. Poudyal, S. P. Russell, P. Manchanda, P. Dev, Physical Review B 105, 054101 (2022). https://doi.org/10.1103/PhysRevB.105.054101

- J. Ying, X.W. Zhang, Y.M. Fan, H.R. Tan, Z.G. Yin, Diamond & Related Materials 19, 1371 (2010), https://doi.org/10.1016/j.diamond.2010.08.004
- H. Murata, T. Taniguchi, S. Hishita, T. Yamamoto, F. Oba, I. Tanaka. Journal of Applied Physics, 114, 233502 (2013), http://dx.doi.org/10.1063/1.4849015
- 11. K. Onabe. Japanese Journal of Applied Physics, 22, 2 (1983) 287. DOI 10.1143/JJAP.22.287
- 12. G.B. Stringfellow. J. Crystal Growth, 27, 21 (1974). https://doi.org/10.1016/S0022-0248(74)80047-3.
- 13. **T. Matsuoka**, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **3**, 54 (1998). https://doi.org/10.1557/S1092578300001265.
- A. Wakahara, T. Tokuda, X.-Z. Dang, S. Noda, A. Sasaki. Appl. Phys. Lett., 71, 906 (1997). https://doi.org/10.1063/1.119684.
- K. M. Gambaryan, V. M. Aroutiounian, A. K. Simonyan, L. G. Movsesyan. Journal of Contemporary Physics, 47, 173 (2012). https://doi.org/10.3103/S1068337212040056.
- 16. K. Yuge, A. Seko, Y. Koyama, F. Oba, I. Tanaka, Physical Review B 77, 094121 K. Yuge, A. Seko, Y. Koyama, F. Oba, I. Tanaka. Physical Review B 77, 094121 (2008). https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.094121.
- 17. K. Yuge. Physical Review B 84, 134207 (2011). https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.134207.
- D.A. Porter, K.E. Easterling, M.Y. Sherif. Phase Transformations in Metals and Alloys, 4<sup>th</sup> ed., CRC Press, Boca Raton, 2022.
- 19. J. Ying, X.W. Zhang, Z.G. Yin, H. R. Tan, S. G. Zhang, Y.M. Fan. Journal of Applied Physics 109, 023716 (2011). https://doi.org/10.1063/1.3544065.
- J. Ying, X.W. Zhang, Y.M. Fan, H. R. Tan, Z.G. Yin. Diamond and Related Materials, 19, 1371-1376 (2010). https://doi.org/10.1016/j.diamond.2010.08.004
- 21. X. Li, et al., Appl. Surf. Sci. 308, 31-37 (2014). http://dx.doi.org/10.1016/j.apsusc.2014.04.059.

#### MISCIBILITY GAPS ANALYSIS FOR BN-SI-C TERNARY MATERIAL SYSTEM

#### L.S. YERANYAN, A.V. MARGARYAN, K.M. GAMBARYAN

Cubic boron nitride (c-BN) is an ultrawide band gap, superhard material with significant potential for applications under extreme temperatures and pressures. Nevertheless, two major challenges hinder its practical utilization in technology: (*i*) the difficulty in producing high-quality c-BN films, and (*ii*) the challenge of effectively n- and p-doping its matrix. This theoretical study focuses on investigating the solubility limits of silicon (Si) and carbon (C) in the c-BN and wurtzite BN (WZ-BN) on the basis of the strictly regular solution approximation. These elements are key candidates as n-type dopants in BN, addressing a critical concern in the realization of c-BN based electronics. The calculated Gibbs free energies of binary mixtures within the temperature range of 800–3000 K indicate that the presence of unstable regions, and consequently, miscibility gaps, are a prevalent characteristic of this system. The analysis reveals that the immiscibility gap is influenced not only by temperature, but also by the crystallographic structure. The calculated results of Si solubility limit in BN-Si binary system are in a good agreement with the latest experimental results. The findings presented here are applicable to the fabrication of multicomponent bulk crystals, epitaxial thin films, and nanostructures based on BN-Si-C solid solutions.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.87–94 (2024) УДК 539; 535 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-87

### ОПТИЧЕСКАЯ И ЭПР-СПЕКТРОСКОПИЯ МОДИФИЦИРОВАННОГО МИКРОВОЛНОВЫМ МЕТОДОМ НАТУРАЛЬНОГО ЦЕОЛИТА, АКТИВИРОВАННОГО ОКСИДОМ ЦИНКА И СЕРЕБРОМ

## Н.Р. АГАМАЛЯН<sup>1\*</sup>, А.Т. ГЮЛАСАРЯН<sup>1</sup>, Е.А. КАФАДАРЯН<sup>1</sup>, М.Н. НЕРСИСЯН<sup>1</sup>, А.А. САРГСЯН<sup>2</sup>, В.В. БАГРАМЯН<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения <sup>2</sup>Институт общей и неорганической химии НАН Армении, Ереван, Армения

\*e-mail: natagham@gmail.com

(Поступила в редакцию 19 марта 2024 г.)

Исследованы образцы натурального цеолита из месторождения Нор-Кохб (Армения), активированного оксидом цинка (30% ZnO) и серебром (30% ZnO + 5% Ag), в процессе химической и термической обработки микроволновым и традиционным методами. Ранее было показано, что процесс микроволновой обработки протекает в 3 раза быстрее, чем при традиционном способе. Рентгенодифракционный анализ показывает наличие в исследуемых образцах цеолита в виде клиноптилолита и оксида цинка. По результатам оптической и ЭПРспектроскопии выявлено наличие ионов Fe<sup>3+</sup> в (каркасных и внекаркасных позициях цеолита) исследуемых образцах. Изучение спектров диффузного отражения показало, что в цеолите, который является широкозонным материалом (ширина запрещенной зоны 4.14 эВ), при активировании 30% ZnO ширина запрещенной зоны уменьшается до 3.38 эВ, а при дополнительном активировании серебром (30% ZnO + 5% Ag) ширина запрещенной зоны уменьшается до 3.31 эВ. Изучена фотокаталитическая активность натурального цеолита, активированного оксидом цинка (30% ZnO) и серебром (30% ZnO + 5% Ag), по реакции разложения метиленового синего при УФ-облучении.

#### 1. Введение

Цеолиты представляют из себя алюмосиликатные кристаллические минералы природного происхождения с каркасной структурой, в которой имеются полости, занятые большими ионами и молекулами воды, причем и те, и другие обладают значительной подвижностью, что обеспечивает возможность ионного обмена и обратимой дегидратации. Дегидратированные цеолиты способны адсорбировать вместо воды другие вещества, на этих свойствах основано их применение в качестве сорбентов и ионообменников. Они применяются в нефтехимии как осушители газов и сред, для очистки питьевых и технических вод, для извлечения радионуклидов, в качестве катализаторов и т. д. [1].

Использование неорганических наночастиц в качестве фотокатализаторов часто сопровождается рядом недостатков, а именно их агломерацией,

приводящей к уменьшению площади поверхности и, как следствие, фотокаталитического потенциала. Эффективным путем решения этих проблем является внедрение фотокатализаторов на различные носители, такие как стекло, углеродистые вещества, цеолиты, керамика, полимеры и др. Исследования показали, что активными фотокатализаторами являются полупроводниковые оксиды (оксиды железа, титана, цинка). Оксид цинка является широкозонным полупроводником и благодаря высокой фоточувствительности, низкому значению коэффициента отражения в УФ области, термической стабильности и механической прочности является перспективным материалом для создания фотокатализаторов [1–5].

В связи с возрастающим спросом на дешевые и эффективные фотокатализаторы становится актуальным создание новых композитов с фотокаталитической активностью. Целью настоящей работы является исследование методами рентгеновской дифракции, оптической и ЭПР-спектроскопии натуральных химически и термически модифицированных цеолитов, активированных оксидом цинка и серебром, в качестве ФК.

#### 2. Экспериментальная часть

Микроволновую обработку цеолита осуществляли в бытовой микроволновой печи марки «CE1073AR» фирмы «Samsung», переделанной для проведения химических процессов, в открытой стеклянной колбе, снабженной обратным холодильником и мешалкой [2]. Условия синтеза: частота микроволн – 2.45 ГГц, мощность микроволновой печи 600 Вт. Химический состав натурального цеолита из Кохба, а также подвергнутого микроволновой и традиционной обработке (в мас%) приведен в нашей прежней работе [6]. Рентгенофазовый анализ (РФА) образцов проводили порошковым методом на дифрактометре URD-63 с излучением Си*К*а.

Фотокаталитическую активность цеолитов, активированных оксидом цинка (30% ZnO) и серебром (30% ZnO + 5% Ag), определяли реакцией деградации метиленового синего (MC) под УФ излучением при различных условиях. Исходная концентрация MC составляла 10 мг/л, количество раствора MC – 100 мл, количество катализатора – 100 мг, время УФ излучения от 5 до 45 мин. Для реакции разложения использовали кварцевый реактор. Для гомогенизации раствор с фотокатализатором перемешивали магнитной мешалкой в темноте в течение 30 минут и эту суспензию облучали УФ-излучением лампы (ПРК-4) на расстоянии 10 см от УФ источника. Каждые 5, 10, 20, 30, 45 мин брали пробы (около 5 мл), фильтровали и анализировали. Концентрацию MC до и после УФ облучения в присутствии синтезированного фотокатализатора, определяли измерением оптической плотности растворов MC.

Регистрация спектров диффузного отражения в УФ–видимой области проводилась с использованием спектрофотометра Specord M-40 с приставкой фотометрического шара в спектральной области 225–800 нм; в качестве эталона применялся порошкообразный MgO.

Содержание Fe<sup>3+</sup> и других парамагнитных центров в цеолите изучали посредством ЭПР с использованием спектрометра ЭПР10-МИНИ (St. Petersburg Instruments) в X-диапазоне (~9.5 ГГц). Низкотемпературные измерения проводились в парах жидкого азота с использованием криостата, позволяющего проводить измерения от 85К и выше. Измельченные образцы в виде порошка помещали в пробирки из плавленого кварца. Измерения проводились при следующих параметрах: частота 9.29–9.5 ГГц (диапазон Х), мощность микроволнового излучения от 0.4 (при низких температурах) до 10 мВт (при комнатной температуре), амплитудная модуляцией 0.4 Гс для узких линий и 5 Гс для широких линий, постоянная времени 0.05 с.

#### 3. Результаты и их обсуждение

Образцы натурального цеолита из месторождения Нор-Кохб (Ноемберянский район, Тавуш, Армения) были использованы при исследованиях. Согласно многочисленным данным, цеолит из этого месторождения преимущественно (от 56 до 85%) состоит из клиноптилолита (HEU-typezeolite) [3, 7, 8]. Природный цеолит подвергали предварительной механической обработке путем измельчения гранул в ступке и просеивания. Затем порошок натурального цеолита очищали путем промывки дистиллированной водой и нагревали при 70°C в течение 8 часов при перемешивании со скоростью 500 об/мин для удаления водорастворимых примесей. Натуральный цеолита высушивали при температуре 105°C в течение 10 часов. Влажность определялась по потере веса в процессе высушивания, и она составила 5.3% уже после 7 часов.

Последующую обработку (модифицирование) натурального цеолита осуществляли двумя методами: традиционным и микроволновым. В обоих случаях 90 г натурального цеолита заливали 180 мл HCl (1M) и выдерживали в кислоте при постоянном перемешивании при  $95^{\circ}$ C/1.5 час в случае традиционной обработки и при мощности 600 Вт (при температуре кипения) в течение 30 мин при микроволновой обработке. Таким образом, при микроволновой обработке процесс протекал в 3 раза быстрее, чем при традиционной. Осадок тщательно отмывали от ионов Cl<sup>+</sup> горячей (дистиллированной) водой, высушивали и подвергали термообработке на воздухе при 220°C в течение 2 час. Потери натурального цеолита после обработки составили 15.9%.

Рентгеновский дифракции анализ, проведенный в работе [9], в которой исследовался цеолит из месторождения Нор-Кохб, показал, что образцы цеолита состоят примерно на 80–90% из клиноптилолита. На рис.1 показаны XRDспектры исследуемых порошкообразных образцов активированного оксидом цинка (30% ZnO) и серебром (30% ZnO + 5% Ag) натурального цеолита до обработки и после обработки микроволновым и традиционным способами, в которых видны характерные рефлексы для натурального цеолита на ~22.5, ~26.7 и ~30.1 градусов и оксида цинка (остальные пики).

Оптические свойства натурального цеолита были получены посредством спектроскопии диффузного отражения в УФ–видимом диапазоне в области длин волн 225–800 нм (рис.2а). Коэффициент отражения натурального цеолита, активированного 30% ZnO, ~75% в области видимого света (выше, чем для неактивированного ~55% [6]) с резким снижением в УФ-диапазоне, а для цеолита с 30% ZnO + 5% Ад максимум отражения составляет ~60% в видимой области с плавным снижением в УФ-диапазоне. В спектрах поглощения (рис.2b), пересчитанным из спектров диффузного отражения по формуле Кубелки–Мунка F(R), все



Рис.1. XRD картина порошкообразных образцов натурального цеолита, активированного оксидом цинка (a, b) (30% ZnO) и (c, d) серебром (30% ZnO + 5% Ag), после обработки (a, c) традиционным и (b, d) микроволновым способами.

образцы демонстрируют интенсивную двойную полосу поглощения с максимумами на длинах волн ~260 и ~350 нм, из которых первый является характерным пиком поглощения для цеолитов. Эта полоса поглощения в коротковолновой области присуща различным типам цеолитов, и, вероятно, возникает в результате переноса заряда кислорода на катионы A1<sup>3+</sup>. Второй максимум определяется краем фундаментального поглощения оксида цинка, в котором могут также участвовать ионы железа. О наличии железа свидетельствуют результаты химического анализа для неактивированного примесями цеолита [6], а также данные



Рис.2. Спектры (а) диффузного отражения (R) и (b) поглощения (функция Кубелки–Мунка F(R)) порошкообразных образцов цеолита: 1, 2 – активированного 30% ZnO и 3, 4 – 30% ZnO + 5% Ag, обработанных микроволновым (2, 4) и традиционным (1, 3) способами.

ЭПР спектроскопии (см. ниже). В работе [10] при изучении натурального цеолита (клиноптилолита) и модифицированного железом в спектрах поглощения первую полосу связывают с переносом заряда кислорода на катионы  $Fe^{3+}$  в октаэдрической координации, а вторую – с наличием внекаркасных олигомеров  $FeO_x$ . За полосу, край которой виден на длинноволновом участке спектра, по-видимому, ответственны ионы  $Fe^{2+}$ , максимум которой приходится на ИК участок спектра.

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

$$F(R) = (1-R)^2/2R,$$
(1)

где функция Кубелки–Мунка *F*(*R*) пропорциональна коэффициенту поглощения α. С помощью формулы (1) получено представленное на рис.2b поглощение.

Ширина запрещенной зоны  $E_g$  материала может быть легко получена путем экстраполяции линейной части до пересечения зависимости  $(\alpha hv)^{1/n}$  от hv с осью энергии hv падающего света:

$$F(R) \times hv = A(hv - E_a)^n \tag{2}$$

где A – коэффициент пропорциональности, связанный с природой материала, h – постоянная Планка и n = 1/2 для прямых разрешенных переходов и n = 2 для непрямых переходов, соответственно.

На рис.3 представлены полученные с помощью спектров диффузного отражения и расчетов по формулам (1) и (2) кривые зависимости  $(F(R) hv)^2$  от энергии света hv, из которых экстраполяцией линейного участка кривых до их пересечения с осью hv определены значения ширины запрещенной зоны для исследуемых образцов натурального цеолита, активированного оксидом цинка (30% ZnO) и серебром (30% ZnO + 5% Ag), после обработки микроволновым и традиционным способами. Неактивированный натуральный цеолит является широкозонным материалом с шириной запрещенной зоны ~4.14 эВ [6]. Активирование натурального цеолита 30%ZnO (ширина запрещенной зоны оксидом цинка ~3.3 эВ) приводит к сужению запрещенной зоны до ~3.38 эВ, а активирование серебром (30% ZnO + 5% Ag) уменьшает запрещенную зону до ~3.31 эВ.



Рис.3. Кривые зависимости  $(F(R) hv)^2$  от энергии света hv для образцов натурального цеолита: 1, 2 – активированного 30% ZnO и 3, 4 – 30% ZnO + 5% Ag, обработанных микроволновым (2, 4) и традиционным (1, 3) способами.



Рис.4. ЭПР-спектры образцов цеолита, полученные в парах жидкого азота (85К): 1, 2 – активированного 30% ZnO и 3, 4 - 30% ZnO + 5% Ag, обработанных микроволновым (2, 4) и традиционным (1, 3) способами.

На рис.4 представлены полученные в парах жидкого азота (85К) спектры ЭПР образцов цеолита, активированного 30% ZnO (кривые 1, 2) и 30% ZnO + 5% Ag (кривые 3, 4), полученные микроволновым и традиционным способами (кривые 2, 4 и 1, 3, соответственно). Асимметричный сигнал в диапазоне от 1000 до 2500 Гс с центром  $g \approx 4.3$ , присутствующий на всех кривых, приписывается к ионам Fe<sup>3+</sup> в октаэдрическом окружении в каркасных и внекаркасных позициях. Узкий пик с  $g \approx 2$  в области частоты 3300 Гс, наблюдаемый нами здесь для образцов цеолита, активированного 30% ZnO и ранее [6] для образцов цеолита без оксида цинка, отсутствует в образцах цеолита, активированного 30% ZnO + 5% Ag. Происхождение этого узкого сигнала связывается с наличием немостиковых кислородных дырочных центров NBOHC. Они являются типичным дефектом в многокомпонентных силикатных стеклах [11, 12].

Значения оптической плотности растворов МС для различных длин волн при различных экспозициях УФ-облучения представлены на рис.5. Результаты показывают, что образцы синтезированного катализатора активно поглощают УФ часть спектра (вплоть до 400 нм). Степень разложения МС определяли измерением оптической плотности растворов МС в зависимости от времени УФ



Рис.5. Спектральная зависимость оптической плотности раствора MC как результат фотокаталитической деградации для (а) цеолита, активированного 30% ZnO и (b) 30% ZnO + 5% Ag.

облучения в присутствии цеолита, активированного 30% ZnO и 30% ZnO + 5% Ag. Как видно из рисунка, оптическая плотность резко уменьшается результате адсорбции и фотокатализа в течение 30 минут для цеолита, активированного 30% ZnO + 5% Ag, и в течение 45 минут для цеолита, активированного 30% ZnO.

#### 4. Заключение

Методами рентгеновской дифракции, оптической и ЭПР-спектроскопии исследованы природные цеолиты из месторождения Нор-Кохб (Армения), активированные 30% ZnO и 30% ZnO + 5% Ag, а также химически и термически модифицированные микроволновым и традиционным методами. Показано, что при микроволновой обработке процесс протекал в 3 раза быстрее, чем при традиционной. Рентгено-дифракционный анализ показывает наличие в исследуемых образцах цеолита в виде клиноптилолита и оксида цинка. Результаты оптической и ЭПР-спектроскопии выявили наличие ионов Fe<sup>3+</sup> в каркасных и внекаркасных позициях. Изучение спектров диффузного отражения показало, что в цеолите, который является широкозонным материалом (ширина запрещенной зоны 4.14 эВ), при активировании 30% ZnO ширина запрещенной зоны уменьшается до 3.38 эВ, а при дополнительном активировании серебром (30% ZnO + 5% Ag) ширина запрещенной зоны уменьшается до 3.31 эВ. Изучена фотокаталитическая активность натурального цеолита, активированного оксидом цинка (30% ZnO) и серебром (30% ZnO + 5% Ag), по реакции разложения метиленового синего при УФ-облучении.

Таким образом, соединение свойств цеолитов (кристаллических минералов природного происхождения с каркасной структурой) при активировании их с оксидом цинка и серебром может быть перспективным для создания дешевых и эффективных фотокатализаторов.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по науке РА в рамках научных проектов №21Т-2F024 «Исследование полупрозрачных темносерых обсидианов из армянских месторождений под воздействием гамма-облучения» и №21Т-1D146 «Микроволновый синтез композиционных материалов с фотокаталитическими свойствами».

#### ЛИТЕРАТУРА

- 1. Природные цеолиты. Москва: Химия, 1985.
- A.A. Sargsyan, V.V. Bagramyan, N.B. Knyazyan, R.K. Ovsepyan, N.R. Agamalyan, G.R. Badalyan. J. Contemp. Phys., 55, 360 (2020).
- 3. D. Moraetis, G.E. Christidis, V. Perdikatsis. American Mineralogist, 92, 1714 (2007).
- 4. K. Qi, B. Cheng, J. Yu, W. Ho. J. Alloys and Compounds, 727, 792 (2017).
- M. Ahmad, I. Ahmad, E. Ahmed, M.S. Akhtar, N.R. Khalid. J. Molecular Liquids, 311, 113326 (2020).
- N.R. Aghamalyan, G.R. Badalyan, A.T. Gyulasaryan, M.N. Nersisyan, G.N. Chilingaryan, A.S. Saakov, A.A. Sargsyan, V.V. Baghramyan. J. Contemp. Phys., 57, 370 (2022).
- 7. H. Yeritsyan, V. Harutiunian, V. Gevorkyan, N. Grigoryan, E. Hakhverdyan,

S. Nikoghosyan, A. Sahakyan, R. Gevorgyan, H. Sargisyan, Y. Keheyan. CEJP, 3, 623 (2005).

- 8. Р.Р. Григорян, Л.А. Вартикян, Т.А. Гарибян, А.О. Саргсян. Химический журнал Армении, **59**, 70 (2006).
- 9. G.E. Christidis, D. Moraetis, E. Keheyan, L. Akhalbedashvili, N. Kekelidze, R. Gevorkyan, H. Yeritsyan, H. Sargsyan. Applied Clay Science, 24, 79 (2003).
- M. Saramok, A. Szymaszek, M. Inger, K. Antoniak-Jurak, B. Samojeden, M. Motak. Catalysts, 11, 450 (2021).
- 11. Y. Sakurai, K. Nagasawa. J. Non-Crystalline Solids, 277, 82 (2000).
- K. Kadono, N. Itakura, T. Akai, M. Yamashita, T. Yazawa. J. Non-Crystalline Solids, 356, 232 (2010).

## OPTICAL AND EPR SPECTROSCOPY OF MICROWAVE-MODIFIED NATURAL ZEOLITE ACTIVATED WITH ZINC OXIDE AND SILVER

#### N.R. AGHAMALYAN, H.T. GYULASARYAN, E.A. KAFADARYAN, M.N. NERSISYAN, A.A. SARGSYAN, V.V. BAGHRAMYAN

Samples of natural zeolite from the Nor-Kokhb deposit (Armenia), activated with zinc oxide (30% ZnO) and silver (30% ZnO + 5% Ag), were studied during chemical and thermal treatment by microwave and traditional methods. It was previously shown that the microwave processing process is 3 times faster than with the traditional method. X-ray diffraction analysis shows the presence of zeolite in the form of clinoptilolite and zinc oxide in the studied samples. Based on the results of optical and EPR spectroscopy, the presence of Fe<sup>3+</sup> ions in the (framework and extra-framework positions of the zeolite) of the studied samples was revealed. The study of diffuse reflectance spectra showed that in zeolite, which is a wide-gap material (band gap 4.14 eV), with activation of 30% ZnO the band gap decreases to 3.38 eV, and with additional activation with silver (30% ZnO + 5% Ag) the bandgap decreases to 3.31 eV. The photocatalytic activity of natural zeolite activated with zinc oxide (30% ZnO) and silver (30% ZnO + 5% Ag) was studied according to the decomposition reaction of methylene blue under UV irradiation.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.95–103 (2024)

УДК 541.64 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-95

### АБСОРБЦИОННЫЕ И ФЛУОРЕСЦЕНТНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ СВЯЗЫВАНИЯ БРОМИСТОГО ЭТИДИЯ С СИНТЕТИЧЕСКИМИ ОДНО- И ДВУХЦЕПОЧЕЧНЫМИ ПОЛИРИБОНУКЛЕОТИДАМИ

## А.П. АНТОНЯН<sup>1\*</sup>, П.О. ВАРДЕВАНЯН<sup>1</sup>, М.С. МИКАЕЛЯН<sup>1</sup>, Г.Г. КОЧАРЯН<sup>2</sup>, Г.А. ПОГОСЯН<sup>1</sup>, М.А. ПАРСАДАНЯН<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Ереванский государственный университет, Ереван, Армения <sup>2</sup>Институт химической физики им. А.Б. Налбандяна, НАН Армении, Ереван, Армения

#### \*e-mail: apant@ysu.am

(Поступила в редакцию 7 февраля 2024 г.)

Проведено сравнительное исследование комплексообразования бромистого этидия (БЭ) и метиленового синего (MC) с синтетическими оц-полинуклеотидами poly(rA) и poly(rU). Выявлено, что интенсивность спектров поглощения этих лигандов уменьшается при взаимодействии с одноцепочечными полинуклеотидами и образовавшегося в результате их гибридизации poly(rA)-poly(rU). Интенсивность флуоресценции также уменьшается в случае комплексов MCполинуклеотид, в случае же БЭ интенсивность флуоресценции увеличивается, по мере возрастания концентраций полинуклеотидов. На основании анализа спектров флуоресценции комплексов БЭ с оц- и гибридного дц-полинуклеотидов построены кривые связывания в координатах Скетчарда ( $r/C_f$  и r) и определены значения параметров связывания – величина константы связывания K и значение оснований n (пар оснований при гибридизации) полинуклеотидов, приходящих на одно место связывания.

#### 1. Введение

В настоящее время олиго- и полинуклеотиды заданной структуры широко применяются в молекулярной биофизике и биологии, в области химического синтеза генов, белковой инженерии, бионанотехнологии (для приготовления ДНК-оригам), при диагностике различных генетических отклонений (с применением праймеров, гибридизационных зондов) [1–3]. Одноцепочечные РНКполимеры гомогенной структуры (poly A, G, C и U) являются хорошими моделями для проверки зависимого от азотистого основания сродства выбранных молекул, а также спектроскопических характеристик исследуемого соединения, индуцированного путем связывания с полимерами [4–7]. Среди спектроскопических методов достаточно информативными являются абсорбционная, флуоресцентная спектроскопии. Последняя, являясь высокочувствительной, получила применение в различных гетерогенных средах, включая живые клетки и ткани [8].

В качестве усилителя флуоресценции в исследованиях НК применяются различные органические красители, среди которых наиболее распространенными являются интеркалирующие соединения, в числе которых – фенантридиновое соединение бромистый этидий (БЭ), тиазиновое соединение метиленовый синий (МС) и др. [9–11]. В настоящее время хорошо исследованы многие аспекты взаимодействия БЭ с дц-ДНК и РНК [12, 13]. Более того, БЭ является незаменимым в изучении процессов гибридизации полинуклеотидных цепей, а также для создания стабильных двух-, трех- или-мультицепочечных структур (например, для ДНК или РНК наноструктур), поскольку имеет высокую константу ассоциации при интеркаляции в эти структуры [14–16]. В этом контексте особенности взаимодействия БЭ с одноцепочечными полирибонуклеотидами мало изучены, и такие исследования, с одной стороны могут стать хорошим дополнением к имеющимся данным, с другой стороны служить базисом для сравнительных исследований по взаимодействию биологически активных соединений с НК.

В работе [17] нами исследовалось взаимодействие другого интеркалятора, MC с одноцепочечными (оц-) poly(rA) и poly(rU) и гибридной двухцепочечной (дц-) poly(rA)-poly(rU). Для выяснения механизмов связывания этого лиганда с указанными полинуклеотидами необходимы сравнительные исследования, в которых эталоном служат лиганды с известными свойствами связывания с макромолекулами. Именно таковым является БЭ.

Учитывая вышеприведенное, целью данной работы явилось исследование особенностей связывания БЭ с оц-poly(rA), оц-poly(rU) и с образовавшейся в результате их гибридизации двухцепочечной poly(rA)-poly(rU) при ионных силах раствора 0.04 и 0.1 М, оценка сродства БЭ с указанными полинуклеотидами по значениям констант связывания K и числа оснований n, приходящих на одно место связывания, и сравнение полученных данных с результатами исследований по взаимодействию MC с указанными полинуклеотидами.

#### 2. Материалы и методы исследования

В работе были использованы сверхчистые синтетические полинуклеотиды poly(rA) (P9403), poly(rU) (P9528), БЭ, МС (Sigma (США)), бидистиллированная вода, NaCl, Na-цитрат, Na<sub>2</sub>EDTA (содержание в рабочих растворах составляло  $10^{-5}$  M). Концентрации препаратов определялись спектрофотометрически, используя следующие коэффициенты экстинкции:  $\varepsilon_{480} = 5800 \text{ M}^{-1}\text{cm}^{-1}$  для БЭ [10],  $\varepsilon_{257} = 10500 \text{ M}^{-1}\text{cm}^{-1}$  для poly(rA),  $\varepsilon_{260} = 9500 \text{ M}^{-1}\text{cm}^{-1}$  для poly(rU) [18]. Средняя молекулярная масса одноцепочечных (оц-) полинуклеотидов составляла 800–1000 кДа. Эксперименты проводились при ионных силах раствора 0.04 и 0.1 M, pH  $\approx 7.0$ .

Спектрофотометрические измерения образцов проводились на UV-VIS Perkin Elmer Lambda 365 спектрофотометре (USA), в кварцевых кюветах с длиной оптического пути 1 см, при температуре 22–25°С. Флуоресцентные исследования проводились на Perkin Elmer спектрофлуориметре MPF-44B (USA). При спектрофотометрическом и флуоресцентном титрованиях концентрация БЭ в растворе оставалась постоянной, концентрации макромолекул увеличивались в интервале изменения  $0 \le r \le 20$  (r = P/D, где P – концентрация фосфатных групп полинуклеотидов, D – концентрация лиганда). Изменения поглощения при  $\lambda_{max} =$ 480 нм и флуоресценции при  $\lambda_{max} = 610$  нм, при длине волны возбуждения  $\lambda_{max} =$ 510 нм регистрировались при каждом соотношении r = P/D, вплоть до таких значений, при которых изменения спектров поглощения или флуоресценции становились незначительными. На основании значений флуоресценции комплексов БЭ с оц- и дц-полинуклеотидами рассчитывались значения  $r/C_f$  и r (координаты Скэтчарда). Значения  $r/C_f$  и r были определены с помощью уравнений (1)–(3):

$$C_f = \frac{F_{\max} - F}{F_{\max} - F_0} C_0, \tag{1}$$

где  $F_{\text{max}}$  – максимальное значение флуоресценции комплекса,  $F_0$  – флуоресценция БЭ в отсутствие полинуклеотидов, F – флуоресценция комплекса при данной концентрации полинуклеотида,  $C_0$  – полная концентрация лиганда в растворе:

$$C_0 = C_f + C_b. (2)$$

Здесь  $C_f$  и  $C_b$  – концентрации свободных и связанных молекул лиганда в растворе. С помощью  $C_b$  можно определить долю молекул лиганда, находящихся в комплексе с полинуклеотидами:

$$r = C_b / C_p , \qquad (3)$$

где С<sub>р</sub>-концентрация фосфатных групп полинуклеотидов в растворе.

С помощью зависимости  $r/C_f$  от r построены кривые Скетчарда по формуле

$$r / C_f = K \left( 1 - nr \right) \left[ \frac{1 - nr}{1 - (n - 1)r} \right]^{n - 1}, \tag{4}$$

которая линеаризовалась по формуле [19]

$$\frac{r}{c_f} = K(1 - (2n - 1)r), \tag{5}$$

где r – число оснований, находящихся в комплексе с молекулами лиганда, K – константа связывания, n – число оснований, приходящихся на одно место связывания.

Спектры поглощения комплексов были анализированы и построены с помощью программы Microsoft Excel 2016. Кривые связывания в координатах Скэтчарда – Wolfram Mathematica 13. Значения *К* и *n* определялись с помощью формул (4), (5), с помощью программы Wolfram Mathematica 13. Экспериментальная погрешность при регистрации поглощений и флуоресценции не превышала 5%.

#### 3. Результаты и обсуждение

Среди гомополинуклеотидных последовательностей полирибоадениловая кислота – poly(rA), представляет наибольший интерес, поскольку имеет важное значение в функционировании мРНК. Все эукариотические мРНК имеют длинные poly(rA) хвосты на 3'-конце, которые играют ключевую роль в ее созревании и стабилизации, а также в инициировании трансляции. С этой точки зрения, эти последовательности могут стать специфической мишенью при терапии злокачественных новообразований [20]. В этом направлении одним из эффективных подходов может стать блокировка poly(rA)-хвоста мРНК комплементарной poly(rU) нитью, в результате их гибридизации. С этой целью нами проводилось исследование комплексообразования классического интеркалятора БЭ с оц- poly(rA) и poly(rU) и гибридной дц-poly(rA)-poly(rU).

На рис.1 приведены спектры поглощения БЭ (1) и его комплексов с оцpoly(rA) (2-15) при ионной силе раствора 0.04 М (а). В правом верхнем углу приведена также кривая зависимости соотношения  $A/A_0$  от концентрации оцpoly(rA), отражающей изменение степени гипохромности при связывании



Рис.1. Спектры поглощения БЭ (1) и его комплексов с (а) оц-poly(rA) кривые (2–15) при ионной силе раствора 0.04 М и с (b) poly(rA)-poly(rU) кривые (2–10) при ионной силе раствора 0.1 М. На вставках приведены кривые зависимости  $A/A_0$  от концентрации полинуклеотида –  $C_p$ .

лиганда с полинуклеотидом. Из приведенного рисунка видно, что спектры поглощения комплексов уменьшены в максимумах и сдвинуты в длинноволновую область примерно на 5 нм, как и в случае МС-оц-полинуклеотид комплексов [17]. Этот эффект является результатом сильного межмолекулярного взаимодействия, вследствие эффективного перекрывания  $\pi$ -электронного облака лиганда основаниями РНК, и указывает на интеркаляционный механизм связывания. Указанные изменения имеют место при уменьшении локальной полярности в непосредственном окружении лиганда, молекулы которого переходят в пространство между основаниями одноцепочечных полинуклеотидов, что и приводит к батохромному сдвигу в длинноволновую область [18].

Исследования проводились также при ионной силе раствора 0.1 М (спектры поглощения и кривые зависимости  $A/A_0$  от концентрации полинуклеотида схожи, поэтому не приводятся). Полученные данные указывают на то, что взаимодействие БЭ с оц-poly(rA) зависит от ионной силы раствора и предпочтительно имеет место при ионной силе раствора 0.04 М. Аналогичный эффект получен при взаимодействии БЭ с оц-poly(rU) (спектры не приведены). В случае же МС эффект уменьшения спектров поглощения намного меньше при комплексообразовании с оц-poly(rU) и значительный в случае оц-poly(rA) [17]. Этот факт указывает на то, что оц-poly(rA) и оц-poly(rU) для БЭ являются одинаковой мишенью, в то время как для МС более предпочтительной мишенью является полиадениловая кислота. Мы полагаем, что предпочтительность МС к оц-poly(rA) обусловлена структурными особенностями этого полинуклеотида, который в растворе находится в виде упорядоченной спирали, с высокой степенью стэкинг-взаимодействий между соседними основаниями при физиологическом pH [18, 19].

Степень гипохромности и батохромный эффект более выражены при взаимодействии БЭ с гибридизованным в отсутствие лиганда poly(rA)-poly(rU), как это видно из рис.1b. Аналогичные результаты получены при титровании растворов комплексов БЭ-оц-poly(rA) раствором оц-poly(rU), до установления эквимолярных концентрациий одноцепочечных полинуклеотидов (тождественные результаты получены при обратном титровании комплексов БЭ-оц-poly(rU) раствором оц-poly(rA)). Очевидно, что в результате добавления комплементарной нити на раствор комплексов БЭ-оц-полирибонуклеотид (оц-poly(rA) на оцpoly(rU) или наоборот), имеет место гибридизация и образование poly(rA)poly(rU), вследствие чего спектры поглощения комплексов лиганда с этими структурами, а также зависимости  $A/A_0$  от концентрации полинуклеотида практически одинаковые. Схожий эффект нами был получен ранее, при исследовании взаимодействия БЭ с двухцепочечной poly(rA)-poly(rU) [20]. Иной результат получен при взаимодействии МС с этими полинуклеотидами. При титрации раствора комплексов МС с оц-poly(rA) раствором оц- poly(rU) (и наоборот), имеет место уменьшение спектров, однако, при определенных соотношениях образовавшихся гибридных дц-структур наблюдается возрастание спектров поглощения [17].

Из рис.1а, b видно, что кривые зависимости  $A/A_0$  комплексов в случае БЭ резко уменьшаются при низких концентрациях полинуклеотида и выходят на плато как в случае poly(rA), так и в случае poly(rA)-poly(rU). При ионной силе раствора 0.1 М зависимость  $A/A_0$  претерпевает небольшое монотонное уменьшение в случае связывания БЭ с оц-poly(rA). На основании этого мы полагаем, что оц-poly(rA), в указанных ионных силах раствора находится в различных структурных состояниях, и для связывания БЭ более предпочтительной является структура этого полинуклеотида, установленная при ионной силе 0.04 М. Аналогичный эффект получен в работе [20], в которой показано, что наиболее предпочтительную структуру, для связывания БЭ, poly(rA)-poly(rU) принимает при ионной силе раствора 0.04 М.

Получены также спектры флуоресценции комплексов БЭ с указанными полинуклеотидами. Отметим, что спектр испускания этого флуоресцентного красителя лежит в области 520–750 нм, с максимумом 610 нм, при длине волны возбуждения 510 нм [19]. По мере увеличения концентрации полинуклеотидов, при постоянной концентрации лиганда, имеет место возрастание интенсивности флуоресценции, которое достигает насыщения и небольшого сдвига в коротковолновую область, при соотношениях r~20.

На рис.2 приведены спектры флуоресценции комплексов БЭ-оц-poly(rA) (а) и с оц-poly(rU) (b) при ионной силе раствора 0.04 М и кривые зависимости  $F/F_0$ от С<sub>р</sub>, количественно отражающие относительное увеличение интенсивности флуоресценции. Из полученных спектров видно, что имеет место возрастание интенсивности при связывании БЭ с оц-poly(rA) (кривые 2–10, на рис.2a) и с оцpoly(rU) (кривые 2–16, на рис.2b) по сравнению с интенсивностью БЭ, в отсутствие полинуклеотида (схожее изменение наблюдалось при взаимодействии БЭ с оц-poly(rA) при ионной силе раствора 0.1 М, кривые не приводятся). Известно, что интенсивность флуоресценции БЭ резко возрастает при взаимодействии с двухцепочечной ДНК, что является следствием полной интеркаляции молекул лиганда [11]. С этой точки зрения мы полагаем, что связанные с оц-полинуклеотидами молекулы лиганда становятся менее доступными для тушителей. Это возможно в том случае, если флуорофорные группы БЭ находятся в менее полярной среде, что имеет место за счет полуинтеркаляционного способа связывания этого лиганда с одноцепочечными полинуклеотидами. С другой стороны, полную интеркаляцию фактически можно исключить в силу того, что увеличение интенсивности флуоресценции связанных молекул БЭ существенно меньше, чем при полной интеркаляции.

Из рис.2 также видно, что имеет место монотонное увеличение интенсивности флуоресценции комплексов БЭ-оц-полинуклеотид, при ионной силе раствора 0.04 М. Однако, по сравнению с полученными данными для комплексов БЭ-оц-



Рис.2. Спектры флуоресценции комплексов БЭ с (a) poly(rA) и с (b) poly(rU), при ионной силе раствора 0.04 М. На вставках приведены кривые зависимости  $F/F_0$  от концентрации полинуклеотида –  $C_p$ .

poly(rA), увеличение интенсивности комплексов в случае оц-poly(rU) –  $(F/F_0$  от  $C_p$ ) примерно в 3 раза меньше. Более того флуоресцентные свойства комплексов БЭ-оц-poly(rU) практически не проявляют зависимость от ионной силы раствора, в противоположность комплексам БЭ-оц-poly(rA).

Существенно иная картина обнаруживается при титрации раствора БЭ раствором, содержащим оц-poly(rA) и оц-poly(rU) в эквимолярных концентрациях. В этом случае интенсивность флуоресценции резко возрастает, как это имеет место при связывании БЭ с дц-ДНК или дц-РНК [20]. При смешивании в эквимолярных концентрациях, оц-poly(rA) и оц-poly(rU) гибридизируются и образуется двухцепочечная poly(rA)-poly(rU) в растворе, в результате которого основным способом связывания БЭ становится полная интеркаляция, поскольку флуоресцентные характеристики становятся тождественными с таковыми, соответствующими полной интеркаляции. Этот факт находится в полном соответствии с результатами работы [20], при взаимодействии БЭ с двухцепочечной poly(rA)poly(rU). При гибридизации оц-poly(rA) с оц-poly(rU) и образовании дц-poly(rA)poly(rU), интенсивность флуоресценции комплексов БЭ с ним возрастает примерно в 6–8 раз, как это видно из рис.3. Этот эффект также обусловлен зависимостью от ионной силы раствора.

В случае же MC выявлено, что интенсивность флуоресценции при взаимодействии с оц-poly(rU) возрастает, а при взаимодействии с оц-poly(rA) уменьшается, как и при взаимодействии с дц-HK. Тушение интенсивности флуоресценции MC при комплексообразовании с оц- или дц-HK обусловлено полуинтеркаляционным способом связывания [17, 20]. Мы полагаем, что БЭ и MC с оц-полинуклеотидами связываются посредством частичной интеркаляции (полуинтеркаля-



Рис.3. Спектры флуоресценции БЭ (1) и его комплексов с poly(rA)-poly(rU) при ионных силах раствора (а) 0.04 и (b) 0.1 М. На вставках приведены кривые зависимости  $F/F_0$  от концентрации полинуклеотида –  $C_p$ .

ция), локализуясь в пространство между соседними основаниями вдоль цепи. С дц-полинуклеотидами (дц-НК) БЭ связывается посредством полной интеркаляции, экранируясь от молекул тушителей (вода, молекулы растворенного кислорода и ионов), в то время как МС и с дц-рибополинуклеотидами (как и дц-НК) взаимодействует полуинтеркаляционным способом [20–23].

На основании анализа изменений спектров флуоресценции комплексов рассчитаны значения  $r/C_f$  и r по формулам (1)–(3), и построены кривые связывания БЭ с указанными полинуклеотидами. На рис.4а–f приведены кривые, полученные при ионных силах 0.04 и 0.1 М. Приведенные кривые практически прямолинейные и описывают связывание одним способом. Отметим, что кривые, построенные по формулам (4) и (5), дают практически одинаковые результаты, что также подтверждает тот факт, что на основании спектров флуоресценции комплексов выявляется только один способ связывания [21]. Как видно из полученных изотерм адсорбции, взаимодействие БЭ с указанными полинуклеотидами некооперативное, и на их основании рассчитаны значения параметров связывания – константы связывания *K* и числа оснований *n* (в случае poly(rA)–poly(rU) – пар оснований), приходящихся на одно место связывания, которые обобщены в табл.1. Из табличных данных видно, что величины значений параметров связывания проявляют зависимость от ионной силы раствора. Тем не менее, значения констант связывания БЭ с оц-poly(rA), полученные при 0.04 и 0.1 М мало



Рис.4. Кривые связывания БЭ с оц-poly(rA) (a), оц-poly(rU) (b) и poly(rA)poly(rU) (c), полученные при ионной силе раствора 0.04 М и (d), (e) и (f) при ионной силе раствора 0.1 M, соответственно.

	0.04	Μ	0.1 M		
Полинуклеотид	$K \times 10^{-5},  \mathrm{M}^{-1}$	п	$K \times 10^{-5},  \mathrm{M}^{-1}$	п	
оц-poly(rA)	$0.28 \pm 0.05$	8.0±1.0	0.23±0.05	10±1.0	
оц-poly(rU)	0.22±0.05	4.0±1.0	$0.095 {\pm} 0.005$	10±1.0	
poly(rA)-poly(rU)	$6.50\pm0.5$	6.0±1.0	$3.30\pm0.5$	4.0±1.0	

Табл.1. Значения параметров связывания БЭ с оц-poly(rA), оцpoly(rU) и poly(rA)-poly(rU) I – ионная сила раствора, K – константа связывания, n-число оснований, приходящих на одно место связывания. K и n определялись по формулам (4) и (5)

отличаются. В то же время, значение n меньше при 0.04 М. Это указывает на то, что при ионной силе раствора 0.04 М структура оц-poly(rA) более доступна для молекул лиганда, чем при 0.1 М. В то же время, сродство БЭ к этому полинуклеотиду практически одинаковое при обоих ионных силах раствора. Полученные данные указывают на то, что под влиянием ионной силы ограничивается в основном число центров адсорбции для молекул лиганда этим способом.

В случае оц-poly(rU) наблюдается существенная зависимость от ионной силы раствора, поскольку значения K отличаются примерно в 2 раза, а значения n - в 2.5 раза. Мы полагаем, что структура оц-poly(rU) при ионной силе 0.1 М менее доступна для связывания БЭ. По всей вероятности, оц-poly(rU), которая менее упорядоченная, чем оц-poly(rA) [18], при высоких ионных силах принимает такую структуру, на которой места для связывания БЭ становятся более ограниченными. В случае poly(rA)-poly(rU) также обнаруживается зависимость сродства лиганда к этому полинуклеотиду от ионной силы раствора, поскольку при 0.1 М значение K вдвое меньше, чем при 0.04 М. Неожиданным, с этой точки зрения является то, что значение п меньше, чем при ионной силе раствора 0.04 М. Тем не менее, полученные результаты находятся в соответствии с результатами работы [20].

#### 4. Заключение

Результаты экспериментальных исследований указывают на то, что фенантридиновое соединение БЭ, как и тиазиновый краситель МС, являющиеся дц-ДНК специфическими лигандами, связываются и с одноцепочечными полинуклеотидами. На основании полученных данных можно также констатировать, что БЭ и МС стимулируют процесс гибридизации и образование дц-poly(rA)-poly(rU) в стандартных условиях (при комнатной температуре, нейтральных значениях pH) [19, 20].

Полученные данные могут иметь практическое значение для понимания молекулярных механизмов взаимодействия интеркалирующих соединений с различными структурами нуклеиновых кислот, а также для дизайна терапевтических веществ на их основе. С другой стороны, эти данные могут стать основой для разработки новых подходов для модуляции генной экспрессии на основании ингибирования гомополинуклеотидных участков мРНК посредством комплементарных нитей.

#### ЛИТЕРАТУРА

- 1. V. Metelev, T. Oretskaya. Russian J. Bioorganic Chemistry, 47, 339 (2021).
- 2. D.A. Glazier, J. Liao, B.L. Roberts, X. Li, K. Yang, C.M. Stevens, W. Tang.

Bioconjugate Chemistry, **31**, 1213 (2020).

- 3. C.F. Bennett. Annual Review of Medicine, 70, 307 (2019).
- 4. C.P. Wigington, K.R. Williams, M.P. Meers, G.J. Bassell, A.H. Corbett. Wiley Interdiscip Rev RNA, 5, 601 (2014).
- 5. N.N. Zhigalova, V.N. Zozulya, O.A. Ryazanova. Biological Physics, Biomolecules, (2020).
- 6. B. Pradhan, L. Haque, S.R.S. Das. PLOS ONE, 9, e8799 (2014).
- J.M.I. Vo, L. Mulroney, J. Quick-Cleveland, M. Jain, M. Akeson, M. Ares jr. RNA, 27, 1497 (2021).
- 8. R.W. Sinkeldam, Y. Tor. Naturally Occurring and Synthetic Fluorescent Biomolecular Building Blocks, in Fluorescent Analogs of Biomolecular Building Blocks: Design and Applications. L.M. Wilhelmsson, Y. Tor (Eds.). NJ, JohnWiley & Sons Inc, Hoboken 2016.
- P. I. Piantanida, B.S. Palm, M. Z'inic', H.s-J. Schneider. J. Chem. Soc. Perkin Transaction, 2, 1808 (2001).
- 10. R. Galindo-Murillo, Th.E. Cheatham. Nucleic Acids Research, 49, 3735 (2021).
- 11. D. Zhang, D. Kondhare, P. Leonard, F. Seela. Chem. Eur. J., 28, e202201294 (2022).
- 12. A.C. H.Castro, E.G. França, L.F. de Paula, M.M.C.N. Soares, L.R. Goulart, J.M. Madurro, A.G. Brito-Madurro. Applied Surface Science, 314, 273 (2014).
- 13. M.L. D'Amico, V. Paiotta, F. Secco, M. Venturini. J. Phys. Chem. B, 106, 12635 (2002).
- 14. N.C. Seeman. Annual Review of Biochemistry, 79, 65 (2010).
- 15. P. Guo. Nature Nanotechnology, 5, 833 (2010).
- 16. F.C. Simmel, B. Yurke, H.R. Singh. Chemical Reviews, 119, 6326 (2019).
- 17. P.O. Vardevanyan, A.P. Antonyan, Z.H. Movsisyan, M.A. Parsadanyan, M.A. Shahinyan, K.R. Grigoryan, H.A. Shilajyan. J. Biomol. Struct and Dyn., 41, 15320 (2023).
- N.W. Luedtke, J.S. Hwang, E. Nava, D. Gut, M. Kol, Y. Tor. Nucleic Acids Research, 31, 5732 (2003).
- 19. S. Das, S. Parveen, A.B. Pradhan. Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 118, 356 (2014).
- 20. M. Hossain, A. Kabir, G.S. Kumar. Dyes and Pigments, 92, 1376 (2012).
- 21. P.O. Vardevanyan, A.P. Antonyan, M.A. Parsadanyan, M.A. Shahinyan. J. Biomolecular Structure and Dynamics, 38, 2493 (2020).
- 22. J.R. Lakowicz. Principles of Fluorescent Spectroscopy. Springer, New York, (2006).
- 23. P.O. Vardevanyan, A.P. Antonyan, M.A. Parsadanyan, H.G. Davtyan, A.T. Karapetyan. Experimental and Molecular Medicine, 35, 527 (2003).

### ABSORPTION AND FLUORESCENCE CHARACTERISTICS OF THE BINDING OF ETHIDIUM BROMIDE WITH SYNTHETIC SINGLE- AND DOUBLE-STRANDED POLYRIBONUCLEOTIDES

## A.P. ANTONYAN, P.O. VARDEVANYAN, M.S. MIKAELYAN, G.H. KOCHARYAN, G.H. POGHOSYAN, M.A. PARSADANYAN

A comparative study of the complex formation of ethidium bromide (EtBr) and methylene blue (MB) with synthetic single-stranded (ss-) polynucleotides poly(rA) and poly(rU) was conducted. The absorption spectra of these ligands were found to decrease upon interaction with ss-polynucleotides as well as poly(rA)-poly(rU) formed at their hybridization. In the case of the complexes MB-polynucleotide, the fluorescence intensity decreases, while in the case of EtBr, the fluorescence intensity increases along with the enhancement of concentrations of polynucleotides. Based on the fluorescence spectra analysis of the complexes EtBr with ss- and hybrid ds-polynucleotides, the binding curves in Scatchard's coordinates were constructed ( $r/C_f$  on r), and the values of the binding parameters of polynucleotides were determined, including the binding constant value K and the number of bases n (base pairs at hybridization) per binding site.
Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.104–109 (2024)

УДК 537.86 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-104

# ОСОБЕННОСТИ ПРОХОЖДЕНИЯ МИКРОВОЛНЫ ЧЕРЕЗ ДВУХСЛОЙНУЮ МЕТАПОВЕРХНОСТЬ ИЗ ПРОВОДЯЩИХ СТЕРЖНЕЙ

# Г. ОГАНЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

\*e-mail: ohanyangor@gmail.com

(Поступила в редакцию 1 апреля 2024 г.)

В двухслойной метаповерхности, состоящей из периодически расположенных стержней, наблюдается сильная дисперсия коэффициента прохождения в микроволновой области спектра. Наблюдаемое явление это результат резонансного взаимодействия микроволны со стержнем, где формируется стоячая волна с аксиальной симметрией, а также эффективного электрического взаимодействия между стержнями соседних слоев. Обнаруженная на эксперименте, кривая зависимости коэффициента прохождения имеет острый пик, что позволяет использовать структуру в качестве полосового фильтра. Обнаружено, что резонансная частота смещается в область низких частот при увеличении длины стержней, их диаметра, а также расстояния между слоями, что открывает возможности управления и контроля микроволны.

#### 1. Введение

Уникальные свойства метаповерхностей обусловлены сочетанием двух важных структурных факторов. Метаповерхность создается из элементов субволновых размеров, различной формы, преимущественно металлических и часто с резонансными свойствами. Кроме того, согласованное воздействие на волну оказывает как периодическое, так и непериодическое плотное расположение элементов.

Метаповерхность, как эффективная система управления волнами, позволяет избирательно по частоте управлять распространением и поляризацией волн [1, 2]. В качестве альтернативы традиционным микроволновым и оптическим материалам в настоящее время применение метаповерхностей простирается от частотно-зависимого управления передаваемыми или отраженными волнамы [3, 4], до манипулирования волновым фронтом [5–7], идеального поглощения [8], кодирования [9]. и генерация поверхностных волн [10, 11].

Другой широко распространенной операцией в современных сетях микроволновой и оптической связи и обработки сигналов является спектральная фильтрация электромагнитных волн, которую можно эффективно реализовать за счет использования частотно-селективных поверхностей, обладающих дисперсионными отражательными или пропускающими свойствами [12–13].

Подавляющее большинство конструкций метаповерхностей основано на

гибридных металлодиэлектрических структурах. Металлы, обладая достаточной дисперсией в видимом и ближнем ИК-спектрах, практически не проявляют дисперсионных свойств на более низких частотах. Следовательно, для создания дисперсионного отклика основным подходом является использование резонансных металлических структур в качестве элементов элементарной ячейки.

Целью работы является определение возможностей использования двухслойной метаповерхности, состоящей из периодически расположенных проводящих стержней, в качестве полосового фильтра. Кроме того, выявление условий управления процессами прохождения и отражения, падающего на такую структуру микроволны.

# 2. Эксперимент

В рассматриваемом нами случае элементами метаповерхности являются тонкие проводящие стержни, резонансно связанные микроволной. Здесь, вблизи тонких проводящих стержней длиною близкой к половине длины волны, формируются стоячие волны с аксиальной симметрией, так что стержень служит в качестве открытого резонатора [14]. Выбор данного металлического стержня определяется двумя факторами. Во-первых, из за перераспределения зарядов возникает кулоновское взаимодействие между металлическими стержнями. Так, в зависимости от расстояния между соединенными стержнями и диэлектрической проницаемости среды меняется резонансная частота, что открывает новые возможности управления как интенсивностью, так и фазой волны. Примечательно, что из-за относительно больших размеров этих металлических элементов задержка взаимодействия становится решающей. Во-вторых, образование подобных стоячих волн не является исключительным свойством микроволнового диапазонах и может реализоваться также в диапазоах от терагерцового до видимого спектра электромагнитных волн.

В эксперименте в качестве образца использовалась двухслойная система из периодически расположенных стержней (см. рис.1). Конструкция изготовлена из медных стержней длиной W = 15, 17, 5, 20 мм и диаметрами D = 0.6, 0.9, 1.1 мм, каждый из которых отстоит от ближайших соседей на данной пленке в направлении, перпендикулярном оси, на l = 3мм, с расстояниями между слоями d = 1, 2, 3 мм. Стержни находятся в среде с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon = 2$  (тефлон). Таким образом, каждый стержень одного слоя активно взаимодействует с двумя соседними стержнями другого слоя.



Рис.1. Продольный(а), поперечный(b) и пространственный(c) виды образца. Диаметр стержня (D), длина стержня (W), расстояние между стержнями (l), расстояние между слоями (d).

Испытуемый образец расположен внутри двухпортового микроволнового волновода (рис.2а). Спектр передачи измерялся векторным анализатором Rohde and Schwarz ZNB20 (рис. 2b).



Рис.2. Линия прохождения микроволны через метаматериал, двухпортовый микроволновый волновод (а), векторный анализатор Rohde and Schwarz ZNB20 (b).

# 3. Результаты и обсуждения

Для управления и контроля за ходом микроволны необходимо определить возможности манипулирования спектром ее прохождения с помощью параметров структуры. В ходе эксперимента определены спектральные зависимости коэффициентов прохождения при различных значениях параметров задачи. При этом для всех приведённых кривых характерно общее поведение зависимости от частоты. Из приведённых рисунков нетрудно заметить, что с возрастанием частоты коэффициент прохождения возрастает, доходя до близкого к единице максимального значения, затем резко падает до нуля. Такое поведение характерно для классического Фано резонанса, что реализуется в системе взаимосвязанных осцилляторов [15,16]. В данном случае эффект реализуется в результате электрического взаимодействия между стержнями соседних слоев.

Кривые зависимости коэффициентов прохождения  $S_{12}$  от частоты при различных значениях длины стержня представлены на рис.3. Как и следовало ожидать, с увеличением длины стержня спектральная область резонансного



Рис.3. Спектр коэффициентов прохождения  $S_{12}$  при длинах стержней W = 15; 17.5; 20 мм, которые соответствуют графикам 1,2,3 соответственно. Здесь D = 0.9мм, l = 3мм, d = 2мм.

взаимодействия с микроволной смещается в область низких частот. Дело в том, что формирование стоячей волны с аксиальной симметрией происходит на длинах стержня, близких к половине длины падающей волны. Заметим также, что с увеличением длины стержня спектральная область резонансного взаимодействия с микроволной сужается. Это можно объяснить возрастанием размера резонатора и увеличением накопленной энергии.

Резонансная частота смещается в область низких частот также при увеличении диаметра стержня (рис.4). В отличие от стандартного резонатора Фабри– Перо здесь при отражении от конца стержня сдвиг фазы отличен от  $\pi$ . При этом сдвиг фазы возрастает при малых диаметрах стержня, что обусловлено смещением резонансной частоты.



Рис.4. Спектр коэффициентов прохождения  $S_{12}$  при диаметрах стержня D = 0.6; 0.9; 1.1 мм, которые соответствуют графикам 1,2,3 соответственно. Здесь W = 20 мм, l = 3 мм, d = 2 мм.

Особый интерес представляет поведение коэффициента прохождения при сближении расстояния d между слоями (рис.5). При s = 1мм крутизна дисперсии коэффициента прохождения достигает максимального значения  $\Delta T/\Delta \nu \approx 10/\Gamma\Gamma$ ц, где  $\Delta T$ -изменение коэффициента прохождения,  $\Delta \nu$ -смещение частоты.

Возникновение исследуемого процесса обусловлено взаимодействием стержней соседних слоев. Дело в том, что формируемая в результате резонансного взаимодействия с микроволной стоячая аксиально симметричная волна



Рис.5. Спектр коэффициентов прохождения  $S_{12}$  при диаметрах стержня d = 1; 2; 3.мм, которые соответствуют графикам 1,2,3 соответственно. Здесь W = 17.5 мм, D = 0.9 мм, l = 3 мм.

имеет сильную радиальную электрическую компоненту. В определенном смысле каждый стержень выступает в качестве диполя и взаимодействие между ними реализуется электрическими полями. Тогда становится понятна причина невозможности наблюдения эффекта в однослойных структурах указанного типа, поскольку поля соседних стержней компенсируются.

## 4. Заключение

Таким образом, в результате резонансного взаимодействия микроволны с двухслойной метаповерхностью, состоящей из периодический расположенных стержней, наблюдается сильная дисперсия коэффициента прохождения. В узкой области частотного спектра падающей микроволны, кривая коэффициента прохождения имеет острый пик, что позволяет использовать структуру в качестве полосового фильтра. Резонансная частота смещается в область низких частот при увеличении длины стержней, их диаметра, а также расстояния между слоями, что открывает возможности управления и контроля микроволны.

Автор выражает благодарность профессору Х.В. Неркараряну за продуктивные обсуждения и замечания.

#### ЛИТЕРАТУРА

- 1. S. Ebel, Y. Deng, M. Hentschel, C. Meng, S. im Sande, H. Giessen, F. Ding, S.I. Bozhevolnyi. Adv. Photonics Nexus, 2(01), 016005 (2023).
- 2. S.B. Glybovski, S.A. Tretyakov, et al., Phys. Rep, 634, 1-72, (2016).
- 3. H. Parsamyan, H. Haroyan, K. Nerkararyan. Appl. Phys. A., 126, 773 (2020).
- 4. L. Huang, C.-C. Chang, B. Zeng, J. Nogan, S.-N. Luo, A.J. Taylor, A.K. Azad, H.-T. Chen. ACS Photonics, 4, 2111–2116, (2017).
- 5. D. Pirrone, A. Ferraro, D.C. Zografopoulos, W. Fuscaldo, P. Szriftgiser, G. Ducournau, R. Beccherelli. IEEE Trans. Wirel. Commun, 21, 8688–8697, (2022).
- M. Karamirad, C. Ghobadi, J. Nourinia. IEEE Trans. Antennas Propag. 69, 1799–1804 (2021).
- 7. S. Teng, Q. Zhang, H. Wang, L. Liu, H. Lv. Photonics Res, 7, 246, (2019).
- 8. Z. Wang, J. Liu, X. Ding, W. Zhao, K. Zhang, H. Li, B. Ratni, S.N. Burokur, Q. Wu. Phys. Rev. Appl, 13, 014033 (2020).
- 9. H. Parsamyan, H. Haroyan, K. Nerkararyan. Today Commun, 31, 103692 (2022).
- 10. H. Chen, W.-B. Lu, Z.-G. Liu, M.-Y. Geng. ACS Photonics, 7, 1425–1435, (2020).
- 11. J.D. de Pineda, G.P. Ward, A.P. Hibbins, J.R. Sambles. Phys. Rev. B, 100, 081409 (2019).
- 12. B. Glybovski, S.A. Tretyakov, P.A. Belov, Y.S. Kivshar, C.R. Simovski. Physics reports: review section of physics letters, 634, 1 (2016).
- Zh. Bai, Q. Zhang, Y. Ju, G. Tao, X. Jiang, N. Kang, Ch. Liu, L. Zhang. Journal of Physics D: Appl. Physics, 90, 75 (2016).
- 14. T. Abrahamyan, H. Haroyan, D. Hambaryan, H, Parsamyan, et al., Journal of Physics D: Applied Physics, 55, 445001 (2022).
- 15. S.B. Glybovski, S.A. Tretyakov, P.A. Belov, Y.S. Kivshar, C.R. Simovski. Physics reports: review section of physics letters, 634, 1 (2016).
- Zh. Bai, Q. Zhang, Y. Ju, G. Tao, X. Jiang, N. Kang, Ch. Liu, L. Zhang. Journal of Physics D: Appl. Physics, 49, 15001 (2016).

# ՄԻԿՐՈԱԼԻՔՆԵՐԻ ՏԱՐԱԾՈՒՄԱՆ ԱՌԱՆՁՆԱՀԱՏԿՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԸ ՀԱՂՈՐԴԻՉ ՁՈՂԵՐԻՑ ՊԱՏՐԱՍՏՎԱԾ ԵՐԿՇԵՐՏ ՄԵՏԱՄԱԿԵՐԵՍՆԵՐՈՎ

#### Գ.Ա. ՕՀԱՆՅԱՆ

Երկշերտ մետամակերևույթում, որը բաղկացած է պարբերաբար դասավորված ձողերից, սպեկտրի միկրոալիքալին շրջանում տեղի է ունենում հաղորդականության զործակզի ուժեղ դիսպերսիա։ Դիտարկվող երեևույթը միկրոայիքային այիքի ռեզոնանսային փոխազդեզության արդյունքն է ձողի հետ, որտեղ ձևավորվում է կանգուն այիքը՝ առանցքի սիմետրիայով, ինչպես նաեւ հարակից շերտերի ձողերի միջեւ տեղի ունեզոո էլեկտրահաղորդականության էֆեկտիվությունը։ Փորձի ժամանան հայտնաբերված փոխանզման գործակցի կորի թեքությունը ունի սուր գագաթ, որը թույլ է տալիս նշված կառուզվածքը օգտագործել, որպես գծային ֆիլտը։ Պարզվել է, որ ռեզոնանսային հաճախությունը տեղափոխվում է զածը հաճախականության շրջան, ձողերի երկարությունը, դրանց տրամագիծը և շերտերի միջև հեռավորությունը մեծացնելու դեպքում, ինչը տալիս է միկրոալիքների կառավարման և վերահսկման լայն հնարավորություն։

# FEATURES OF MICROWAVE PROPAGATION THROUGH A TWO-LAYER META SURFACE MADE OF CONDUCTIVE RODS

#### G. OHANYAN

In a two-layer meta surface consisting of periodically arranged rods, there is a strong dispersion of the transmission coefficient in the microwave region of the spectrum. The observed phenomenon is the result of the resonant interaction of the microwave with the rod, where a standing wave with axial symmetry is formed, as well as the effective electrical interaction between the rods of adjacent layers. The transmission coefficient curve found in the experiment has an acute peak, which allows the structure to be used as a bandpass filter. It was found that the resonant frequency shifts to the low-frequency region as the length of the rods, their diameter, and the distance between the layer's increases, which opens up the possibilities of controlling and controlling the microwave.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.110–117 (2024) УДК 533.9 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-110

# ВЛИЯНИЕ МАГНИТНОГО ПОЛЯ НА ЭЛЕКТРОННЫЕ СОСТОЯНИЯ В НАНОПЛАСТИНКЕ CdSe С ПРИМЕСЯМИ

# Д.А. БАГДАСАРЯН, А.А. НААПЕТЯН, В.А. АРУТЮНЯН, А.А. САРКИСЯН\*

Институт прикладных проблем физики НАН Армении, Ереван, Армения

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

(Поступила в редакцию 7 февраля 2024 г.)

Исследовано поведение электрона в коллоидной нанопластинке CdSe, содержащей примесные центры, при наличии аксиального магнитного поля. Вычисления проведены с учётом существенного скачка диэлектрической проницаемости в аксиальном направлении. Получено двумерное уравнение Шрёдингера с эффективным потенциалом взаимодействия электрона с примесными центрами, локализованными в центральной плоскости нанопластинки. Показано, что с увеличением числа примесей, влияние магнитного поля на уровни энергии электрона ослабевает.

#### 1. Введение

Полупроводниковые нанопластинки (nanoplatelet — NPL) в последнее десятилетие стали предметом интенсивного изучения, так как обладают важными физическими характеристиками, позволяющими рассматривать эти системы в качестве функциональной базы полупроводниковых приборов нового поколения: светодиодов, солнечных элементов и т.д. [1–5]. Благодаря геометрическому совершенству ансамблей NPL спектр излучения и поглощения этих структур обладает малой полушириной, что делает их источниками оптического излучения различных цветов, обладающих большой четкостью [6, 7].

Простейшей моделью NPL является прямоугольный параллелепипед, одна из сторон которого значительно меньше двух других. На сегодняшний день реализованы коллоидные CdS, CdSe NPL, размеры которых колеблются в пределах от нескольких атомных слоев, в направлении сильного размерного квантования, до нескольких десятков атомных слоев, в направлениях слабого размерного квантования. Фактически NPL являются гибридными структурами, занимающими промежуточное положение между квантовыми ямами и квантовыми точками, при этом эффективное движение носителей заряда в таких системах можно считать двумерным, предполагая, что в направлении малой толщины NPL носители заряда находятся на основном уровне размерного квантования.

Для теоретического описания физических процессов в NPL необходимо дать математическую модель изучаемой структуры, учитывающую с одной стороны эффект квантового ограничения носителей заряда, а с другой — наличие существенного скачка диэлектрической проницаемости на границе перехода NPL– окружающая среда. Эффект скачка диэлектрической проницаемости может быть учтен, в частности, путем введения изображения зарядов, что существенно влияет на характер кулоновского взаимодействия между носителями заряда в NPL: экситонов, примесей, трионов, биэкситонов и т. д. [8–11]. Ясно, что наличие примесных центров в NPL будет существенным образом отражаться на оптических характеристиках изучаемых образцов. Так, например, в работе [12] показано, что с увеличением концентрации примесей спектр поглощения (оптического излучения) смещался в коротковолновую область (синее смещение), что являлось прямым следствием влияния многопримесных центров на характер оптических переходов.

С теоретической точки зрения наиболее простой моделью, описывающей влияние большого количества примесных центров на поведение электронов, является модель электрона, совершающего движение в полях, создаваемых примесными центрами. Можно ожидать довольно интересное поведение энергетического спектра такого электрона в зависимости от характера распределения примесей в NPL [13] – от полного хаоса до полного порядка. Вместе с этим наличие внешнего воздействия, например, магнитного поля может являться дополнительным рычагом для управления энергетическим спектром электрона в вышеприведенной системе. Целью настоящей работы является исследование влияния магнитного поля на одноэлектронный спектр в NPL (CdSe), содержащей многопримесные центры.

#### 2. Теория

В приближении эффективной массы одноэлектронный гамильтониан изучаемой системы (рис.1), будет иметь следующий вид:

$$\widehat{H}(\mathbf{r},\mathbf{r}_{imp(1)},...,\mathbf{r}_{imp(N)}) = \frac{1}{2\mu} \left(\widehat{\mathbf{P}} - \frac{e}{c}\mathbf{A}\right)^{2} + V_{conf}(\mathbf{r}) + V_{self}(\mathbf{r}) + V_{imp-e}(\mathbf{r};\mathbf{r}_{imp(1)},...,\mathbf{r}_{imp(N)})$$
(1)

где **A** — вектор-потенциал аксиального магнитного поля,  $V_{\text{conf}}(\mathbf{r})$  — ограничивающий потенциал NPL,  $V_{\text{self}}(\mathbf{r})$  — потенциальная энергия, обусловленная наличием электростатических изображений электрона в NPL (поляризационные эффекты),  $V_{\text{imp-e}}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_{\text{imp(1)}}, ..., \mathbf{r}_{\text{imp(N)}})$  — энергия взаимодействия электрона с примесными центрами, соответствующая заданной конфигурации примесей { $\mathbf{r}_{\text{imp(i)}}$ }.

Для указанных выше энергий имеем следующие выражения [14]:



Рис.1. Схематический рисунок нанопластинки CdSe со сторонами  $L_1 \times L_2 \times L_3$ , содержащей примесные центры в плоскости z = 0.

$$V_{\rm conf}(\mathbf{r}) = V_{\rm conf}^{(1)}(z) + V_{\rm conf}^{(2)}(x, y), \qquad (2)$$

$$V_{\rm conf}^{(1)}(z) = \begin{cases} 0, |z| \le L_3 / 2\\ V_0, |z| > L_3 / 2, \end{cases}$$
(3)

$$V_{\rm conf}^{(2)}(x,y) = \begin{cases} 0, |x| \le L_1 / 2, |y| \le L_2 / 2\\ \infty, |x| > L_1 / 2, |y| > L_2 / 2, \end{cases}$$
(4)

$$V_{\text{e-imp}}(\mathbf{\rho}, z; \mathbf{\rho}_{\text{imp}(1)}, ..., \mathbf{\rho}_{\text{imp}(N)}) = -\sum_{i=1}^{N} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \frac{k^{|m|} q_{\text{imp}} e}{\epsilon_1 \sqrt{\left(\mathbf{\rho} - \mathbf{\rho}_{\text{imp}(i)}\right)^2 + (z + mL_3)^2}},$$
 (5)

где учтено, что все примеси находятся в плоскости z = 0 [14],  $k = (\varepsilon_1 - \varepsilon_2)/(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)$ ,  $\varepsilon_1 = 6$  — диэлектрическая постоянная NPL,  $\varepsilon_2 = 2$  — диэлектрическая постоянная окружающей среды.

Потенциальная энергия электрона, обусловленная мнимыми электронными зарядами, имеет следующий вид [14]:

$$V_{\text{self}}(z) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{k^{[m]} e^2}{2\varepsilon_1 \left| z - (-1)^m z + mL_3 \right|}, \quad \left| z \right| \le L_3 / 2 , \tag{6}$$

$$V_{\text{self}}(z) = \frac{2\varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{k^{2m+1}e^2}{(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)|2z + (2m+1)L_3|} - \frac{ke^2}{2\varepsilon_2|2z - L_3|}, \quad |z| > L_3 / 2, \quad (7)$$

$$V_{\text{self}}(z) = V_{\text{self}}(-z), \quad z < -L_3 / 2,$$
 (8)

В вышеприведенных формулах учитываются только изображения зарядов в направлении z, так как латеральные размеры  $L_1$  и  $L_2$  намного больше  $L_3$ , что позволяет пренебречь боковыми эффектами электростатического изображения.

Выбирая калибровку векторного потенциала в виде:

$$\mathbf{A} = \left\{ A_x = -\frac{By}{2}, A_y = \frac{Bx}{2}, A_z = 0 \right\}.$$
 (9)

для магнитной части гамильтониана  $\widehat{H}_{\text{magn}}$  получим:

$$\widehat{H}_{\text{magn}} = \frac{i\hbar\omega_{\text{H}}}{2} \left( x \frac{\partial}{\partial y} - y \frac{\partial}{\partial x} \right) + \frac{\mu\omega_{\text{H}}^2 \left( x^2 + y^2 \right)}{8}, \qquad (10)$$

где  $\omega_{\rm H} = |e|B / \mu c$  — циклотронная частота электрона.

Из рис. 2 следует, что учёт скачка диэлектрических проницаемостей  $\varepsilon_1$  и  $\varepsilon_2$ приводит к сглаживанию профиля прямоугольного потенциала, а также к уменьшению высоты потенциала ограничения  $V_0$ . Отметим, что вычисления произведены для структуры CdSe со следующими материальными параметрами:  $\mu_e = 0.12m_0$  — эффективная масса электрона, где  $m_0$  — масса свободного электрона,  $a^*_{B} = \hbar^2 \varepsilon / \mu e^2 = 4.25$  нм — эффективный радиус Бора для электрона и  $R^* = \mu e^4 / 2\hbar^2 \varepsilon^2 = 18.01$  мэВ — эффективная энергия Ридберга.

Поставленную задачу будем решать с учётом специфической геометрии NPL. Для этого заметим, что можно выделить аксиальную часть задачи, считая



Рис.2. Профиль суммарного потенциала  $V_{\text{conf}}^{(1)}(z) + V_{\text{self}}(z) = V_{\text{total}}(z)$ . Здесь *n* есть число монослоев.

движение электрона в этом направлении значительно более быстрым, чем в плоскости *ХОУ*. Для этого представим волновую функцию электрона в виде произведения

$$\Psi(\mathbf{r}) = \psi_1(z)\psi_2(x, y), \qquad (11)$$

где  $\psi_1(z)$  является решением уравнения

$$\left\{\frac{-\hbar^2}{2\mu_{ze}}\frac{d^2}{dz^2} + V_{\rm conf}^{(1)}(z) + V_{\rm self}(z)\right\}\psi_1(z) = E_z\psi_1(z).$$
(12)

Далее, усредняя индивидуальные потенциалы электрон–примесного взаимодействия по волновым функциям  $\psi_1(z)$ 

$$V_{e-imp(i)}^{ind}(\boldsymbol{\rho}; \boldsymbol{\rho}_{imp(i)}) = \int_{-L/2}^{+L/2} \psi_1^*(z) V_{e-imp(i)}^{ind}(\boldsymbol{\rho}, z; \boldsymbol{\rho}_{imp(i)}) \psi_1(z) dz , \qquad (13)$$

для двумерной потенциальной энергии, создаваемой всеми *N* примесями данной конфигурации, в плоскости *XOY* получим

$$V_{\text{e-imp}}^{\text{eff}}(\boldsymbol{\rho}; \boldsymbol{\rho}_{\text{imp}(1)}, \dots, \boldsymbol{\rho}_{\text{imp}(N)}) = \sum_{i=1}^{N} \left\{ \int_{-L/2}^{+L/2} \psi_{1}^{*}(z) V_{\text{e-imp}(i)}^{\text{ind}}(\boldsymbol{\rho}, z; \boldsymbol{\rho}_{\text{imp}(i)}) \psi_{1}(z) dz \right\}.$$
 (14)

Таким образом, для двумерной волновой функции  $\psi_2(x, y)$  получим следующее уравнение

$$\begin{bmatrix} -\hbar^{2} \left( \frac{\partial^{2}}{\partial x^{2}} + \frac{\partial^{2}}{\partial y^{2}} \right) + V_{\text{conf}}^{(2)}(x, y) \end{bmatrix} \psi_{2}(x, y) + \widehat{H}_{\text{magn}}\psi_{2}(x, y) + V_{\text{eff}}^{\text{eff}}(\mathbf{\rho}; \mathbf{\rho}_{\text{imp}(1)}, ..., \mathbf{\rho}_{\text{imp}(N)}) \psi_{2}(x, y) = E^{2D}(B)\psi_{2}(x, y).$$
(15)

Решение уравнения (15) находится на основе численного моделирования с помощью метода конечных элементов применительно к плоскости *XOY*. При этом используется треугольная ячейка для дискретизации прямоугольника размером  $L_1 \times L_2$ .

# 3. Обсуждение результатов

Сразу отметим, что учёт скачка диэлектрической проницаемости приводит к увеличению энергии взаимодействия электрона с примесными центрами. На рис.3 изображены зависимости энергий  $V_{\rm e-imp}^{\rm ind}(\rho)$  в случае, когда присутствует эффект диэлектрического ограничения (кривая 1) и в случае, когда скачок диэлектрической проницаемости не учтён (кривая 2). Как следует из этого рисунка, учёт диэлектрического скачка приводит к существенному увеличению энергии связи электрона с примесным центром, при этом потенциал увеличивает также своё дальнодействие.



Рис.3. Зависимость  $V_{e,imp}^{ind}(\rho)$  (1) в случае, когда учитывается эффект скачка диэлектрических проницаемостей и (2) в случае, когда этот скачок не учтён.

На рис.4а, b представлены трёхмерные зависимости потенциалов взаимодействия электрона с примесными центрами, распределёнными в плоскости XOY(рис.5а, b) в случае, когда учитывается скачок  $\varepsilon$  (рис.4а и рис.5а), и когда эффект диэлектрического ограничения не учитывается (рис.4b и рис.5b).

Из приведённых рисунков следует, что потенциальная яма, возникающая благодаря взаимодействию электрона с примесным центром, глубже в случае учёта эффекта диэлектрического ограничения. При этом сравнение рис.5а с рис.5b показывает, что учёт скачка є приводит к более существенной локализации электрона вокруг конкретного примесного центра. Как следствие, эффект перекрытия волновых функций электрона относящихся к соседним примесям



Рис.4. Трёхмерные зависимости  $V_{imp}^{\text{eff}}(x, y)$  (а) в случае, когда учитывается скачок диэлектрических проницаемостей  $\varepsilon$ , и (b), когда скачок  $\varepsilon$  не учитывается.



Рис.5. Распределение потенциалов примесей (а) в случае, когда учитывается эффект диэлектрического ограничения, и (b) в случае, когда не учитывается.

ослабевает. Индивидуальные потенциальные энергии электрон-примесного взаимодействия имеют более существенное влияние в случае учёта эффекта диэлектрического ограничения. Отметим также, что на рис.5 представлены распределения потенциалов примесей в случае учёта скачка є (рис.5а) и без учёта данного скачка (рис.5b).

На рис.6а, b представлены зависимости разности энергий электрона в поле примесных центров при наличии магнитного поля и в его отсутствие:

$$E^{\rm 2D}(B) - E^{\rm 2D}(0) = \Delta E^{\rm 2D}(B), \qquad (16)$$

в случае одного примесного центра N = 1, и при наличии N = 10 примесей.

Сразу отметим, что в случае одной примеси зависимость  $\Delta E^{2D}(B)$  имеет близкий к симметрии характер поведения для различных направлений вращения примесного электрона. При этом нумерация энергетических уровней вводится в отсутствие магнитного поля по мере возрастания энергий с помощью квантового числа  $n_{xy} = 1, 2, ...$  С увеличением числа примесей влияние магнитного поля на электронные состояния начинает ослабевать, так как число притягивающих центров увеличивается и, как следствие, зависимость  $\Delta E^{2D}(B)$  от величины магнитного поля становится более слабо выраженной, при этом асимметрия относительно прямой  $\Delta E^{2D}(B) = 0$  становится более выраженной. Отметим также, что с увеличением *B* зависимость  $\Delta E^{2D}(B)$  приближается к линейной. Это



Рис.6. Зависимости энергий  $\Delta E^{\infty}(B)$  от величины магнитного поля *B* (а) в случае одной примеси и (b) в случае, когда число примесей N = 10.

объясняется тем, что уровни энергии электрона в магнитном поле в случае отсутствия примесей линейным образом зависят от величины магнитного поля (уровни Ландау). При этом, как следует из рис.6а, с ростом магнитного поля разность  $\Delta E^{2D}(B)$  для уровня  $V_{conf}^{(1)}(z) + V_{self}(z)$  меняется медленнее по сравнению с уровнем  $n_{xy} = 5$ , чем и объясняется смена местами кривых  $\Delta E^{2D}(B)$  для уровней  $n_{xy} = 6$  и  $n_{xy} = 5$ . В случае, когда число примесей N = 10, вышеуказанный эффект с увеличением магнитного поля становится более выраженным. Это является проявлением крайне сложного характера поведения одноэлектронных состояний в результирующем поле примесей. К сожалению, выявить закономерности перераспределения уровней с ростом магнитного поля не удается в связи со сложностью изучаемой системы. Однако следует отметить, что с ростом магнитного поля подобное поведение характерно для различных систем, ярким примером чего являются осцилляции основного уровня энергии двумерного ротатора в магнитном поле (эффект Ааронова–Бома для связанных состояний) [15].

#### 4. Заключение

В работе исследовалось поведение электрона в поле примесных центров, локализованных в нанопластинке CdSe, при наличии аксиального магнитного поля. Учёт скачка диэлектрической проницаемости на границе перехода нанопластинка—окружающая среда в аксиальном направлении приводит к существенному усилению взаимодействия электрона с отдельно взятым примесным центром.

Выявлен сложный характер зависимости энергетических уровней электрона от величины магнитного поля. При этом показано, что с ростом числа примесей влияние магнитного поля на электронные уровни ослабевает.

Работа выполнена в рамках программы «Поддержка передовых научных исследований 21AG — 1С022» Комитета по высшему образованию и науке.

#### ЛИТЕРАТУРА

- 1. L. Kavan, J.H. Yum, M. Grätzel. ACS Nano, 5, 165 (2011).
- Y. Guo, F. Gao, P. Huang, R. Wu, W. Gu, J. Wei, F. Liu, H. Li. Energy Mater. Adv., 2022, 9857943 (2022).
- 3. A.A. Kostanyan. J. Contemp. Phys., 42, 107 (2007).
- 4. M. Jong Ju, I.Y. Jeon, J.Ch. Kim, K. Lim, H.J. Choi, S.M. Jung, I.T. Choi, Y.K. Eom, Y.J. Kwon, J. Ko, J.J. Lee, H.K. Kim, J.B. Baek. Adv. Mater., 26, 3055 (2014).
- 5. Z. Chen, B. Nadal, B. Mahler, H. Aubin, B. Dubertret. Adv. Funct. Mater., 24, 295 (2014).
- 6. J. Yu, R. Chen. Info Mat., 2, 905 (2020).
- R. Scott, J. Heckmann, A.V. Prudnikau, A. Antanovich, A. Mikhailov, N. Owschimikow, M. Artemyev, J.I. Climente, U. Woggon, N. B. Grosse, A.W. Achtstein. Nature Nanotech., 12, 1155 (2017).
- D.F. Macias-Pinilla, J. Planelles, I. Mora-Seró, J.I. Climente. J. Phys. Chem. C, 125, 15614 (2021).
- 9. F.V. Antolinez, F.T. Rabouw, A.A. Rossinelli, R.C. Keitel, A. Cocina, M.A. Becker,

**D.J. Norris.** Nano Lett., **20**, 5814 (2020).

- 10. D.F. Macias-Pinilla, J. Planelles, J.I. Climente. Nanoscale, 14, 8493 (2022).
- 11. L. Peng, W. Cho, X. Zhang, D. Talapin, X. Ma. Phys. Rev. Materials, 5, L051601 (2021).
- 12. V.A. Harutyunyan, H.A. Sarkisyan. Nanomaterials, 12, 3690 (2022).
- M. Dufour, E. Izquierdo, C. Livache, B. Martinez, M.G. Silly, T. Pons, E. Lhuillier, C. Delerue, S. Ithurria. ACS Appl. Mater. Interfaces, 11, 10128 (2019).
- 14. T. Takagahara. Phys. Rev. B, 47, 4569 (1993).
- A. Lorke, R.J. Luyken, A.O. Govorov, J.P. Kotthaus, J.M. Garcia, P.M. Petroff. Phys. Rev. Lett., 84, 2223 (2000).

# ሆԱԳՆԻՍԿԱԿԱՆ ԴԱՇՏԻ ԱԶԴԵՑՈՒԹՅՈՒՆԸ ԷԼԵԿՏՐՈՆԱՅԻՆ ՎԻՃԱԿՆԵՐԻ ՎՐԱ ԽԱՌՆՈՒԿՆԵՐՈՎ CdSe ՆԱՆՈԹԻԹԵՂՈՒՄ

# Դ.Ա. ԲԱՂԴԱՍԱՐՅԱՆ, Ա.Ա. ՆԱՀԱՊԵՏՅԱՆ, Վ.Ա. ՀԱՐՈՒԹՅՈՒՆՅԱՆ, Հ.Ա. ՍԱՐԳՍՅԱՆ

Հետազոտվել է էլեկտրոնի վարքը կոլոիդալ, CdSe, բազմախառնուկային կենտրոններ պարունակող նանոթիթեղում, աքսիալ մագնիսական դաշտի առկայության պայմաններում։ Հաշվարկները իրականացվել են հաշվի առնելով դիէլեկտրական թափանցելիության թոիչքաձև փոփոխությունը աքսիալ ուղղությամբ։ Ստացվել է էլեկտրոնի և նանոթիթեղի կենտրոնական հարթությունում խառնուկային կենտրոնների փոխազդեցության տեղայնացված էֆեկտիվ պոտենցիայը իր մեջ ներառող Շրյոդինգերի երկչափ հավասարումը։ Ցույց է տրվել, որ խառնուկների թվի ամին զուգրնթաց մագնիսական դաշտի ազդեցությունը էլեկտրոնի էներգիական մակարդակների վրա թույանում է։

# INFLUENCE OF MAGNETIC FIELD ON THE ELECTRON STATES IN CdSe NANOPLATELETS WITH IMPURITIES

# D.A. BAGHDASARYAN, A.A. NAHAPETYAN, V.A. HARUTYUNYAN, H.A SARKISYAN

In the presence of the axial magnetic field, the behavior of the electron in the colloidal CdSe nanoplatelet containing multi-impurity centers has been investigated. The calculations have been carried out considering the essential jump of the dielectric constant in the axial direction. The two-dimensional Schrodinger equation with the effective potential of the interaction of electron and impurity centers, localized in the central plane of the nanoplatelet has been obtained. It has been shown that the magnetic field influence on the electron energy levels weakens with increasing the number of impurities.

Известия НАН Армении, Физика, т.59, №1, с.118–124 (2024) УДК 535.44 DOI:10.54503/0002-3035-2024-59.1-118

# ПОВЫШЕНИЕ РАЗРЕШАЮЩЕЙ СПОСОБНОСТИ ОТОБРАЖЕНИЯ РЕНТГЕНОВСКОГО ФАЗОВОГО КОНТРАСТА В УСТРОЙСТВЕ, ОСНОВАННОМ НА ТРЕХБЛОЧНОМ ЛАУЭВСКОМ ИНТЕРФЕРОМЕТРЕ

# Л.А. АРУТЮНЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

e-mail: levhar@ysu.am

(Поступила в редакцию 10 апреля 2024 г.)

Рассматривается возможность повышения разрешающей способности отображения рентгеновского фазового контраста с использованием трехблочного лауэвского интерферометра. Для устранения одного из недостатков указанной схемы – искажения интерференционной картины при дифракции предметной волны на анализаторе интерферометра – предлагается анализатор заменить двумя кристаллическими блоками равной толщины, которые являются дифракционной линзой, подавляющей указанные искажения. Методом численного моделирования показано, что низкая когерентность исходного излучения повышает качество отображения фазового контраста предлагаемым методом.

# 1. Введение

В последнее время развиваются различные методы отображения фазового контраста жесткого рентгеновского излучения (см. [1, 2] и ссылки в них). Эффективность таких методов основана на том, что чувствительность фазового контраста при исследовании внутренней структуры объектов из легких элементов (в частности, мягких биологических тканей) с помощью жесткого рентгеновского излучения на три порядка превосходит чувствительность контраста поглощения [3]. Одним из первых и наиболее распространенных методов отображения фазового контраста является интерферометрический метод на основе трехблочного лауэвского интерферометра (так называемого LLL-интерферометра) [4, 5]. При такой схеме регистрируется интерференционная картина, образованная за третьим блоком интерферометра между пучками: (а) волна, проходящая в первом и отраженная от второго и третьего блоков интерферометра, и (b) волна, отраженная от первого и второго, и проходящая в третьем блоке. Исследуемый фазовый объект размещается между вторым и третьим блоками интерферометра, на пути одного из указанных пучков – предметной волны (см. рис.1). Введенное тестовым объектом фазовое смещение предметной волны приводит к перераспределению регистрируемых интерференционных полос, что, в свою очередь, служит основанием для восстановления пространственного распределения фазового смещения (см. алгоритмы, приведенные в [6, 7]).



Рис.1. Устройство отображения фазового контраста на основе LLL-интерферометра.

Среди основных преимуществ такого устройства следует отметить высокую стабильность и простоту настройки, что достигается благодаря монолитности всего интерферометра. Интерферометр работает в режиме деления амплитуды, что существенно снижает требования к когерентным характеристикам исходного излучения. Благодаря этому такие устройства работают с использованием лабораторных источников жесткого рентгеновского излучения и были реализованы задолго да появления синхротронных источников жесткого рентгеновского излучения [4].

В качестве недостатков метода отметим малое пространство для размещения тестового образца (порядка или меньше одного см). Для смягчения этого недостатка предложен интерферометр с модифицированной геометрией [8], а также немонолитный интерферометр на двух монокристаллах [9]. Устойчивость немонолитного интерферометра обеспечивается сложной системой управления с обратной связью. Другим недостатком схемы является низкая разрешающая способность (~30 мкм), которая обусловлена «размытием» предметной волны при дифракции на третьем блоке интерферометра (анализаторе). Причиной этого является особенность брэгговской дифракции, согласно которой малое угловое смещение падающего на кристалл излучения от точного брэгговского направления приводит к смещению кристаллического пучка на угол, превосходящий исходное смещение на 4-5 порядков. В результате, малое угловое расхождение предметной волны, обусловленное рефракцией на тестовом объекте, приводит к большому угловому смещению лучей в анализаторе, следовательно, к размазыванию интерференционной картины до размеров 2t tan $\theta_{\rm B}$ , где  $\theta_{\rm B}$  – угол Брэгга и t – толщина кристаллических блоков (в том числе и анализатора). Один из способов борьбы с этим – использование трехблочного брэгговского интерферометра, в котором волна отражается от поверхности анализатора, не проникая вглубь пластины [10]. Другой способ – уменьшение толщины анализатора до значений 40-100 мкм с целью улучшения разрешающей способности до ~10 мкм [11, 12]. Недостатком последнего метода является трудность изготовления такого устройства и его низкая точность.

Еще в 70-х годах прошлого столетия было показано, что двухблочная кристаллическая система с параллельными блоками равной толщины, ориентированной согласно лауэвской геометрии дифракции (LL-система), является своего рода дифракционной линзой [13]. Падающая на него δ-образная волна, претерпевая последовательную дифракцию на обоих блоках интерферометра, вновь фокусируется на выходной поверхности второго блока, что экспериментально было доказано в работе [14]. В результате, LL-система способна передавать рентгеновское изображение от входной поверхности системы на выходную. Это также было продемонстрировано экспериментально в работе [15]. На основании дифракционной фокусировки рентгеновских лучей в LL-системе был предложен и экспериментально реализован компактный рентгеновский спектрометр [16]. В работе [17] явление дифракционной фокусировки исследовано более подробно. В частности, исследована зависимость характеристик фокусировки от различных отклонений реальной экспериментальной установки от идеальной: разность толщин блоков системы, смещение падающего пучка от точного брэгговского направления, ширина падающего пучка и т.д. В работе [18] предлагается использовать LL-систему для подавления дифракционного размытия предметной волны в анализаторе LLL-интерферометра, и, тем самым, увеличить разрешающую способности интерферометра в задачах отображения фазового контраста.

В работе [19] методом численного моделирования рассмотрена целесообразность использования LL-системы для вышеуказанной передачи рентгеновского изображения. В частности, показано, что низкая когерентность исходного излучения приводит к подавлению интерференционных искажений, и, тем самым, к повышению качества и однозначности получаемого изображения.

Целью представленной работы является исследование возможности повышения разрешающей способности вышепредставленного устройства для отображения фазового контраста на основе LLL-интерферометра путем использования в ней LL-системы.

#### 2. Схема устройства и численное моделирование

В предполагаемом устройстве отображения фазового контраста третий блок LLL-интерферометра (анализатор) заменяется вышеупомянутой двухблочной LL-системой (так называемый LLL+L-интерферометр). Целью такой модификации является подавление дифракционного размытия части предметной волны, вызванной дифракций на третьем блоке, благодаря последующей дифракции на четвертом. Схематическая картина и ход лучей в таком устройстве представлены на рис.2. Проведено численное моделирование такого устройства. В качестве тестовых фазовых объектов рассмотрены: проволока с прямоугольным сечением, направленная перпендикулярно плоскости рассеяния, и одномерная сетка из таких проволок. Предполагается, что фазовый сдвиг пресекающих проволоку лучей предметной волны составляет –  $\pi$  рад. Фазовый объект расположен на подложке, приводящей к фазовому сдвигу – п рад. Проведено численное моделирование отображения фазового контраста как по традиционной схеме на основании LLL-интерферометре, так и для модифицированной, основанной на LLL+Lинтерферометре. В качестве исходного излучения выбрана как плоская монохроматическая волна, падающая под точным брэгговским направлением (когерентное излучение), так и излучение от лабораторной рентгеновской трубки с



Рис.2. Модифицированное устройство отображения фазового контраста, основанного на добавлении четвертого блока к LLL-интерферометру (LLL+L интерферометр).

размером источника 400 мкм (имеется ввиду размер поперечной проекции в плоскости рассеяния), с учетом естественной ширины спектральной линии характеристического излучения. Расстояние лабораторного источника от интер-



Рис.3. Рассчитанное распределение интенсивности на детекторе в зависимости от координаты x, направленной вдоль линии пересечения детектора с плоскостью рассеяния, для фазового объекта в виде одиночной проволоки, направленной перпендикулярно к плоскости рассеяния. Ширина проволок составляет (a,b) 7 мкм и (c,d) 70 мкм для (a,c) трехблочного и (b,d) четырехблочного интерферометров. Толстые сплошные линии соответствуют некогерентному, тонкие – когерентному излучению, и пунктиром показаны сдвиги фаз, обусловленные тестовыми объектами (без учета фазового сдвига подложки в – $\pi$  рад).

ферометра выбрано 1 м, так что излучение в этом случае вполне можно считать некогерентным. Рассматривается отражение Si(220) характеристического излучения Мо $K\alpha_1$ . Толщина кристаллических пластин выбрана  $t = 12.25 \Lambda = 446.8 \text{ мкм}$ , где  $\Lambda = 36.48 \text{ мкм}$  – экстинкционная длина брэгговской дифракции. Результаты расчетов представлены на рис.3 (для фазовых объектов в виде одиночной проволоки) и на рис.4 (для фазовых объектов в виде одномерной сетки из таких проволок). На рисунках (а) и (с) представлены расчеты отображения фазового контраста на основе трехблочного интерферометра, а на (b) и (d) – четырехблочного. Толстыми сплошными линиями представлены расчеты для некогерентного излучения, тонкими линиями – когерентного излучения.



Рис.4. Рассчитанное распределение интенсивности на детекторе в зависимости от координаты x, направленной вдоль линии пересечения детектора с плоскостью рассеяния, для фазового объекта в виде одномерной сетки из проволок с ширинами (a,b) 10 мкм, и (c,d) 70 мкм для (a,c) трехблочного и (b,d) четырехблочного интерферометров. Расстояния между проволоками в сетке составляют (a,b) 30 мкм, и (c,d) 50 мкм. Толстые сплошные линии соответствуют некогерентному, тонкие – когерентному излучению, и пунктиром показаны сдвиги фаз, обусловленные тестовыми объектами (без учета фазового сдвига подложки в – $\pi$  рад).

Как видно из рис.3а, в случае тонкой одиночной проволоки изображение, получаемое трехблочным интерферометром, сильно размыто, и имеет ширину  $\Delta \simeq 175$  мкм, что близко к сумме из ширины проволоки (d) и длины основания треугольника Бормана  $2t \tan \theta_B$ . Это объясняется тем, что малая ширина проволоки приводит к большому угловому разбросу дифрагированной от него предметной волны, которая при распространении в анализаторе заполняет треугольник Бормана целиком. В случае четырехблочного интерферометра, после дифракции на четвертом блоке изображение сужается до ширины проволоки.

При этом изображение одинаково резкое как для некогерентного, так и когерентного излучения. Это связано с низким уровнем фона при отображении δ-образной волны двухблочной LL-системой [13].

С увеличением толщины проволоки угловое уширение предметной волны, дифрагированной от проволоки, уменьшается, в результате чего изображение при использовании трехблочной системы и когерентного излучения сужается до ширины проволоки (см. рис.3с). Тем не менее интерференционные эффекты искажают изображение, разделяя проволоку на две части.

Интерференционные искажения возникают и при тестовом объекте в виде одномерной сетки при использовании когерентного излучения, причем, как в случае трехблочного, так и четырехблочного интерферометров. В частности, в случае трехблочного интерферометра эти искажения воспринимаются как артефакты в виде тонких проволок, между реальными проволоками. В случае четырехблочного интерферометра с использованием некогерентного излучения искажения сводятся к минимуму, и исчезают артефакты в изображении.

#### 3. Заключение

Методом численного моделирования показана целесообразность применения четырехблочного лауэвского интерферометра для отображения рентгеновского фазового контраста с высоким разрешением. В предлагаемой схеме используется некогерентный источник рентгеновского излучения, что делает устройство компактным, с возможностью использования лабораторных источников излучения.

Работа выполнена при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке МОНКС РА и гранта ANSEF 23AN:PS-opt-2992.

#### ЛИТЕРАТУРА

- 1. A. Momose. Jpn. J. Appl. Phys., 44(9A), 6355 (2005).
- 2. V.V. Lider, M.V. Kovalchuk. Crystallogr. Rep., 58, 769 (2013).
- 3. A. Momose, J. Fukuda. Med. Phys., 22(4), 375 (1995).
- 4. U. Bonse, M. Hart. Applied Physics Letters, 6(8), 155 (1965).
- 5. U. Bonse. M. Hart. Zeitschrift für Physik, 188, 154 (1965).
- 6. M. Takeda, I. Hideki, S. Kobayashi. J. Opt. Soc. Am., 72(1), 156 (1982).
- J. Bruning, D. Herriott, J. Gallagher, D. Rosenfeld, A. White, D. Brangaccio. Applied optics, 13(11), 2693 (1974).
- 8. U. Bonse, M. Hart. Applied Physics Letters, 7(4), 99 (1965).
- A. Yoneyama, T. Takeda, Y. Tsuchiya, et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 523(1–2), 217 (2004).
- 10. I. Koyama, H. Yoshikawa, A. Momose. Jpn. J. Appl. Phys., 42 L80 (2003).
- 11. A. Momose, I. Koyama, Y. Hamaishi, H. Yoshikawa, T. Takeda, J. Wu, Y. Itai, K. Takai, K. Uesugi, Y. Suzuki. Japanese Journal of Applied Physics, 38, 625 (1999).
- 12. A. Momose, I. Koyama, Y. Hamaishi, H. Yoshikawa, T. Takeda, J. Wu, Y. Itai, K. Takai, K. Uesugi, Y. Suzuki. J. Phys. IV France, 104, 599 (2003).
- 13. V. Indenbom, I. Slobodetskii, K. Truni. Sov. Phys. JETP, 39(3), 542 (1974).

- 14. E. Suvorov, V. Polovinkina. JETP Lett., 20(5), 145 (1974).
- V. Indenbom, G. Aladzhadzhyan. Dokl. Akad. Nauk SSSR, 227(4), 827 (1976) [in Russian].
- 16. V. Indenbom, E. Suvorov. JETP Lett., 23(9), 441 (1976).
- 17. V. Indenbom, E. Suvorov, I. Slobodetskii. Sov. Phys. JETP, 44(1), 187 (1976).
- 18. A. Egiazaryan, K. Truni, A. Mkrtchyan. JETP Letters, 68(9), 711 (1998).
- 19. L.A. Haroutunyan. J. Contemp. Phys., 58(4), 435 (2023).

# ԵՌԱԲԼՈԿ ԼԱՈՒԷ ԻՆՏԵՐՖԵՐՈՄԵՏՐԻ ՎՐԱ ՀԻՄՆՎԱԾ ՌԵՆՏԳԵՆՅԱՆ ՓՈՒԼԱՅԻՆ ԿՈՆՏՐԱՍՏԸ ԱՐՏԱՊԱՏԿԵՐՈՂ ՍԱՐՔԻ ԼՈՒԾՈՂ ՈՒԺԻ ԲԱՐՉՐԱՑՈՒՄ

#### Լ.Ա. ՀԱՐՈՒԹՅՈՒՆՅԱՆ

Դիտարկվում է եռաբլոկ Լաուէ ինտերֆերոմետրի օգտագործմամբ ռենտգենյան փուլային կոնտրաստի արտապատկերման սարքի լուծող ուժի բարձրացման հնարավորությունը։ Նշված սարքի հիմնական թերություններից մեկի՝ ինտերֆերոմետրի անալիզատորի վրա առարկայական ալիքի դիֆրակցիայի հետևանքով ինտետերֆերենցիոն շերտերի աղավաղման վերացման նպատակով առաջարկվում է ինտերֆերոմետրի անալիզատորը փոխարինել հավասար հաստություններով երկբլոկ բյուրեղական համակարգով, որը հանդիսանում է նշված աղավաղումները ձնշող դիֆրակտային ոսպնյակ։ Թվային մոդելավորման եղանակով ցույց է տրված, որ սկզբնական ալիքի ցածր կոհերենտությունը բերում է առաջարկվող եղանակով փուլային կոնտրաստի արտապատկերման որակի բարձրացման։

# INCREASE IN THE RESOLUTION OF HARD X-RAY PHASE-CONTRAST IMAGING IN A DEVICE BASED ON A TRIPLE LAUE-CASE INTERFEROMETER

#### L.A. HAROUTUNYAN

The possibility of increasing the resolution of X-ray phase-contrast imaging on a device based on a triple Laue-case interferometer is considered. To address one of the drawbacks of this scheme – the distortion of the interference pattern during the diffraction of the object wave on the interferometer analyzer – it is proposed to replace the analyzer with two crystalline blocks of equal thickness. These blocks act as a diffraction lens, suppressing the mentioned distortions. Numerical simulations demonstrate that the low coherence of the initial radiation increases the quality of phase-contrast imaging using this method.