ՀԱՅԱՍՏԱՆԻ ՀԱՆՐԱՊԵՏՈՒԹՅԱՆ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԶԳԱՅԻՆ ԱԿԱԴԵՄԻԱ

НАЦИОНАЛЬНАЯ АКАДЕМИЯ НАУК РЕСПУБЛИКИ АРМЕНИЯ

SEQE4UAPC ИЗВЕСТИЯ

ՖԻՉԻԿԱ ФИЗИКА

ረሀያበር TOM

60

<u>№</u> 1

22 ЧИИ "ЧЪБЛЪЮЗЛЪЪ" 2ГИЗИГИЧОЛЪЮЗЛЪЪ ИЗДАТЕЛЬСТВО "ГИТУТЮН" НАН РА ЪГЪЧИЪ ЕРЕВАН

2025

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 Նատելյա 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. Բուղկեր (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

1۴. ՝ հալլաքյան, Ե. ՝ հոբրովոլսկի, Ա. Գրիգորյան, Ա. Սանուկյան, Ի. Սինենկո,	
Դ. Արշակյան. Տեղային թեք թիրախների ջերմային բնութագրերի	
վերլուծություն գաուսյան բաշխումով պրոտոնային փնջերով	
ձառագայթման դեպքում	3
Ա.Յու. Պետրոսյան. Պրոտոն հարուցված ռեակցիաների գրգռման	
ֆունկցիաների ուսումնասիրությունը բնական անագի վրա TALYS 1.96 և	
EMPIRE 3.2 կոդերի միջոցով	14
D. Tripathi, S. Kaur, A. Vijay, K. Walia. Nonlinear Dynamics of Q-Gaussian Laser	
Beam in Collisional Plasma: Effect of Linear Absorption	24
Ա.Դ. Սարգսյան, Դ.Ե. Բոստանջյան, Դ.Հ. Սարգսյան. Էլեկտրամագնիսա-	
կանորեն հարուցված թափանցիկության ռեզոնանս սելեկտիվ	
անդրադարձման ազդանշանում ատոմական Cs-ի գոլորշիներում	26
Գ. Դեմիրխանյան, Բ. Պատրիզի, Գ. Տոչի, Պ. Մուժիկյան, Մ. Վանինի, Ա. Պիրի,	
Մ. Մարկարյան, Ռ. Կոստանյան. Yb:LuAG բյուրեղի սպեկտրադիտական	
և տեսական մանրակրկիտ վերլուծություն կրիոգենային և սենյակային	
ջերմաստիձաններում	33
Դ.Հ. Բադալյան, Ա.Ժ. Մուրադյան. Արատով նանոխողովակում էլեկտրոնի՝	
սպինից կախված բազմուղի թունելացում երկայնական մագնիսական	
դաշտում	42
TT TT TT TT TT have been so that the compared so that the strength set of the streng	
Ա.Ա. Ավետրսյան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Լ. Վարդանյան,	
Ա.Ա. Ավետրայան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Լ. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվան-	
Ա.Ա. Ավետրայան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Լ. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվան- տային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված	
Ա.Ա. Ավետրայան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Լ. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվան- տային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցու-	
Ա.Ա. Ավետրայան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Լ. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվան- տային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցու- թյունը	51
 Ա.Ա. Ավետրայան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Ա. Ասատրյան, Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը	51
 Ա.Ա. Ավետրայան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Ա. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվան- տային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցու- թյունը Վ.Ս. Հակոբյան, S.Վ. Գալստյան, Ռ.Ս. Հակոբյան. Հեղուկ բյուրեղներում մոլեկուլների կողմնորոշման ուղղության լուսամակածված հիդրո- 	51
 Ա.Ա. Ավետրայան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Ա. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվան- տային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցու- թյունը Վ.Ս. Հակոբյան, Տ.Վ. Գալստյան, Ռ.Ս. Հակոբյան. Հեղուկ բյուրեղներում մոլեկուլների կողմնորոշման ուղղության լուսամակածված հիդրո- դինամիկական թռիչքաձև ինվերսիա	51 62
 Ա.Ա. Ավետրայան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Է. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը	51 62
 Ա.Ա. Ավետրայան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Է. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիճակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը	51 62 71
 Ա.Ա. Ավետրայան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդանյան, Ա.Է. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիճակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը	51 62 71
 Ա.Ա. Ավետրսյան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Է. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը	51 62 71
 Ա.Ա. Ավետրսյան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Է. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիճակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը	51 62 71 79
 Ա.Ս. Ավետրսյան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդասյան, Ա.Է. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը	51 62 71 79
 Ա.Ա. Ավետրսյան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Լ. Վարդանյան, Ա.Լ. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը	51 62 71 79
 Ա.Ա. Ավետիսյան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Է. Վարդանյան, Ա.Է. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը Վ.Ս. Հակոբյան, Տ.Վ. Գալստյան, Ռ.Ս. Հակոբյան. Հեղուկ բյուրեղներում մոլեկուլների կողմնորոշման ուղղության լուսամակածված հիդրոդինամիկական թռիչքաձև ինվերսիա Ա.Ա. Նահապետյան. Չփոխազդող էլեկտրոնային գազի ջերմադինամիկան ուժեղ սեղմված անհամաչափ էլիպսարդային InAs քվանտային կետում Ա.Ա. Կուզանյան, Վ.Ս. Կուզանյան, Գ.Ռ. Եփկողոսյան, Լ.Գ. Մհերյան, Վ.S. Թաթոյան, Վ.Ս. Կուզանյան, Գ.Ռ. Բադալյան. Նանոչափային ջերմաէլեկտրական միաֆոտոն դետեկտոր Ա.Ն. Ավագյան, Գ.Գ. Հարությունյան, Ա.Վ. Հովսեփյան, Մ.U. Սականյան, Ա.Կ. Կոստանյան. Ալմաստի սաղմերի առաջացումը թերմոդինամիկ կայունության տիրույթում, որպես մարտենսիտային տիպի գրաֆիտ- 	51 62 71 79
 Ա.Ա. Ավետրսյան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Լ. Վարդանյան, Ա.Լ. Ասատրյան, Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիճակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը Վ.Ս. Հակոբյան, Տ.Վ. Գալստյան, Ռ.Ս. Հակոբյան. Հեղուկ բյուրեղներում մոլեկուլների կողմնորոշման ուղղության լուսամակածված հիդրոդինամիկական թռիչքաձև ինվերսիա	5162717990
 Ա.Ա. Ավետիսյան, Ա.Կ. Ջոթյան, Գ.Կ. Ջոթյան, Ա.Լ. Վարդանյան, Ա.Լ. Ասատրյան. Միաշերտ գրաֆենում ծանծաղ խառնուկային քվանտային վիձակների կոհերենտ կառավարումը փուլային մոդուլված երկերանգ լազերային իմպուլսներով ռելաքսային պրոցեսների ազդեցությունը Վ.Ս. Հակոբյան, Տ.Վ. Գալստյան, Ռ.Ս. Հակոբյան. Հեղուկ բյուրեղներում մոլեկուլների կողմնորոշման ուղղության լուսամակածված հիդրոդինամիկական թռիչքաձև ինվերսիա Ա.Ա. Նահապետյան. Չփոխազդող էլեկտրոնային գազի ջերմադինամիկան ուժեղ սեղմված անհամաչափ էլիպսարդային InAs քվանտային կետում Ա.Ա. Կուզանյան, Ա.Ս. Կուզանյան, Վ.Ռ. Նիկողոսյան, Լ.Գ. Մհերյան, Վ.S. Թաթոյան, Վ.U. Կուզանյյան, Գ.Ռ. Բադալյան. Նանոչափային ջերմաէլեկտրական միաֆոտոն դետեկտոր Ա.Ն. Ավագյան, Գ.Գ. Հարությունյան, Ա.Վ. Հովսեփյան, Մ.U. Սականյան, Ա.Կ. Կոստանյան. Ալմաստի սաղմերի առաջացումը թերմոդինամիկ կայունության տիրույթում, որպես մարտենսիտային տիպի գրաֆիտալմաստ անմիջական ֆազային անցման արդյունք Գ.Ե. Այվազյան, Մ.Վ. Կատկով, Լ.Մ. Լախոյան. Սև սիլիցիումի անկյունային 	5162717990

Գ.Ն. Մարգսյան. Թույլ հարվածային ալիքները սֆերիկ սիմետրիկ	
ռեակտորներում պրոպանի օքսիդացման ընթացքում։ փորձարարական	
ապացույցներ ռեակտորի կենտրոնում թամբ տիպի հատուկ կետի	
առկայության մասին	115
Ա.Ե. Մարտիրոսյան, Պ.Հ. Մուժիկյան, Վ.Ա. Մարտիրոսյան, Ռ.Բ. Կոստանյան.	
Մարդկանց դիտարկումը էլիպսային եղջյուրանման տարրի միջոցով	
սպեկտրի ջերմային ինֆրակարմիր տիրույթում	121
Ա.Պ. Այվազյան, Մ.Կ. Բալյան, Ս.Ա. Պետրոսյան, Վ.Պ. Մկրտչյան. Երկու ձեղքի	
վրա ռենտգենյան դինամիկական դիֆրակցիան անցած փնջում	130
Ա.Պ. Անտոնյան, Մ.Ա. Փարսադանյան, Ա.Հ. Կարապետյան, Պ.Հ. Վարդևանյան.	
Ռիբո- և դեզօքսիռիբո-պոլինուկլեոտիդների հետ մեթիլենային կապույտի	
համալիրների ֆլուորեսցենտային հատկությունների ուսումնասիրու-	
թյունը	139
Ի.Վ. Վարդանյան, Մ.Խ. Բադալյան, Ծ.Մ. Ջոմարդյան, Ե.Բ. Դալյան,	
Ս.Գ. Հարությունյան. TOEPYP4 և ZոTOEPYP4 պորֆիրինների փոխազ-	
դեցությունը G-քուադրուպլեքսների հետ	149

CONTENTS

R. Dallakyan, N. Dobrovolski, A. Grigoryan, A. Manukyan, I. Sinenko,	
D. Arshakyan. Analysis of Thermal Characteristics of Locally Inclined Targets	
under Irradiation by Proton Beams with a Gaussian Current Distribution	3
A.Yu. Petrosyan. Study of Excitation Functions of Proton-Induced Reactions on Natural	
Tin Using TALYS 1.96 and EMPIRE 3.2 Codes	14
D. Tripathi, S. Kaur, A. Vijay, K. Walia. Nonlinear Dynamics of Q-Gaussian Laser	
Beam in Collisional Plasma: Effect of Linear Absorption	24
A.D. Sargsyan, D.E. Bostanjyan, D.H. Sarkisyan. Resonance of Electromagnetically Induced Transparency in the Selective Reflection Signal of Atomic Cs Vapor	26
G. Demirkhanyan, B. Patrizi, G. Toci, P. Muzhikyan, M. Vannini, A. Pirri, M.	
Margaryan, R. Kostanyan. Detailed Spectroscopic and Theoretical Analysis of Yb:LuAG Crystal at Cryogenic and Room Temperatures	33
D.A. Badalyan, A.Zh. Muradyan. Spin-Dependent Multichannel Tunneling of an Electron in a Nanotube with an Impurity in a Longitudinal Magnetic Field	42
A.A. Avetisyan, A.P. Djotyan, G.P. Djotyan, A.L. Vartanian, A.L. Asatryan.	
Coherent Control of a Shallow Impurity's Quantum States in Graphene Monolayer	
by Bichromatic Phase Modulated Laser Pulses: Influence of Relaxation Processes	51
V.S. Hakobyan, T.V. Galstyan, R.S. Hakobyan. Light-Induced Abrupt	
Hydrodynamic Inversion of Molecular Orientation Direction in Liquid	
Crystals	62
A.A. Nahapetyan. Non-Interacting Electron Gas Thermodynamics in the Strongly Oblate Asymmetric Ellipsoidal InAs Quantum Dot	71
A.A. Kuzanyan, A.S. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, L.G. Mhervan, V.T. Tatoyan,	
V.S. Kuzanyan, G.R. Badalyan. Nano-Scale Thermoelectric Single-Photon	
Detector	79
A.N. Avagyan, G.G. Arutyunyan, A.V. Hovsepyan, M.S. Sakanyan,	
A.K. Kostanyan. Formation of Diamond Nuclei in the Thermodynamic Stability	
Region as a Result of a Direct Martensitic-Type Graphite-To-Diamond Phase	
Transition	90
G.Y. Ayvazyan, M.V. Katkov, L.M. Lakhoyan. Modeling and Experimental Study of	
Black Silicon Angular Reflection	106
G.N. Sargsyan. Weak Shock Waves in Reactors with Spherical Symmetry During	
Oxidation of Propane: Experimental Proof of the Presence of a Singular Point of	
the Saddle Type in the Center of the Reactor	115
A.E. Martirosyan, P.H. Muzhikyan, V.A. Martirosyan, R.B. Kostanyan. Human	
Detection Using an Elliptical Horn Element in the Thermal Infrared Region	121
A.P. Aivazyan, M.K. Balyan, S.A. Petrosyan, V.P. Mkrtchyan. Double-Slit X-Ray	
Dynamical Diffraction in the Transmitted Beam	130
A.P. Antonyan, M.A. Parsadanyan, A.H. Karapetyan, P.O. Vardevanyan. Study of	
Fluorescent Properties of Methylene Blue Complexes with Ribo- and Deoxyribo-	
Polynucleotides	139
I.V. Vardanyan, M.Kh. Badalyan, Ts.M. Jomardyan, Y.B. Dalyan,	
S.G. Haroutiunian. The Interaction of TOEPyP4 and ZNTOEPyP4 Porphyrins	
with G-Quadruplexes	149

СОДЕРЖАНИЕ

Р. Даллакян, Н. Добровольский, А. Григорян, А. Манукян, И. Синенко, Д. Аршакян. Анализ тепловых характеристик локально наклонных мишеней	
при облучении протонными пучками с гауссовым распределением тока	3
А.Ю. Петросян. Изучение функций возбуждения протон-индуцированных реакций	
на природном олове при помощи колов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2	14
D. Tripathi, S. Kaur, A. Vijav, K. Walia. Nonlinear Dynamics of O-Gaussian Laser Beam	
in Collisional Plasma: Effect of Linear Absorption	24
А.Л. Саргсян. Л.Е. Бостанлжян. Л.Г. Саркисян. Резонанс электромагнитно-	
индушированной прозрачности в сигнале селективного отражения в парах	
атомарного Сѕ	26
Г. Лемирханян, В. Patrizi, G. Toci, П. Мужикян, М. Vannini, A. Pirri,	
М. Маркарян. Р. Костанян. Летальный спектроскопический и теоретический	
анализ кристалла YB:LuAG при криогенных и комнатных температурах	33
Л.А. Балалян. А.Ж. Муралян. Спин-зависимое многоканальное тупнелирование	
электрона в нанотрубке с примесью в пролольном магнитном поле	42
А.А. Аветисян. А.П. Лжотян. Г.П. Лжотян. А.Л. Вартанян. А.Л. Асатрян.	
Когерентное управление квантовыми состояниями мелкой примеси в монослое	
графена с помощью фазомодулированных бихроматических лазерных	
импульсов: влияние процессов релаксации	51
В.С. Акобян, Т.В. Галстян, Р.С. Акопян. Свето-индуцированная скачкообразная	
гидродинамическая инверсия направления молекулярной ориентации в жидких	
кристаллах	62
А.А. Наапетян. Термодинамика невзаимодействующего электронного газа в сильно	
сплюснутой асимметричной эллипсоидальной квантовой точке InAs	71
А.А. Кузанян, А.С. Кузанян, В.Р. Никогосян, Л.Г. Мгерян, В.Т. Татоян,	
В.С. Кузанян, Г.Р. Бадалян. Наноразмерный термоэлектрический	
однофотонный детектор	79
А.Н. Авагян, Г.Г. Арутюнян, А.В. Овсепян, М.С. Саканян, А.К. Костанян.	
Образование зародышей алмаза в области термодинамической стабильности как	
результат прямого фазового перехода графит–алмаз мартенситного типа	90
Г.Е. Айвазян, М.В. Катков, Л.М. Лахоян. Моделирование и экспериментальное	
исследование углового отражения черного кремния	106
Г.Н. Саргсян. Слабые ударные волны в реакторах со сферической симметрией при	
окислении пропана: экспериментальное доказательство наличия особой точки	
типа «седло» в центре реактора	115
А.Е. Мартиросян, П.Г. Мужикян, В.А. Мартиросян, Р.Б. Костанян. Обнаружение	
людей с помощью эллиптического рупорного элемента в тепловой	
инфракрасной области	121
А.П. Айвазян, М.К. Балян, С.А. Петросян, В.П. Мкртчян. Рентгеновская	
динамическая дифракция на двух щелях в проходящем пучке	130
А.П. Антонян, М.А. Парсаданян, А.Г. Карапетян, П.О. Вардеванян.	
Сравнительное исследование флуоресцентных свойств комплексов	100
метиленового синего с рибо- и дезоксирибо-полинуклеотидами	139
И.В. Варданян, М.Х. Бадалян, Ц.М. Джомардян, Е.Б. Далян, С.Г. Арутюнян.	1.10
Взаимодействие порфиринов ТОЕРуР4 и ZnTOEРуР4 с G-квадруплексами	149

Заказ № ???

Тираж 150. Цена договорная. Подписано к печати 29.04.2025. Печ. л. 10.0. Типография НАН РА. Ереван, пр. Маршала Баграмяна, 24. Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.3–13 (2025) УДК 621.039.8.002 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-3

АНАЛИЗ ТЕПЛОВЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ЛОКАЛЬНО НАКЛОННЫХ МИШЕНЕЙ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ПРОТОННЫМИ ПУЧКАМИ С ГАУССОВЫМ РАСПРЕДЕЛЕНИЕМ ТОКА

Р. ДАЛЛАКЯН, Н. ДОБРОВОЛЬСКИЙ^{*}, А. ГРИГОРЯН, А. МАНУКЯН, И. СИНЕНКО, Д. АРШАКЯН

Национальная научная лаборатория им. Алиханяна, Ереван, Армения

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

(Поступила в редакцию 12 марта 2025 г.)

Обоснована применимость ступенчатой аппроксимации Гауссова распределения плотности тока при расчётах тепловых свойств плоских и локально наклонных мишеней (ЛНМ) в программе ANSYS. В рамках шести-зонной модели проведено численное моделирование температуры плоской и аксиальносимметричной ЛНМ при однородном распределении плотности облучающего тока и нескольких вариантах Гауссова распределения. Анализ полученных температурных зависимостей для плоской мишени показал, что они представляют собой сумму двух вкладов: постоянного (не зависящего от координаты) и переменного (Гауссова). Показано, что при переходе от однородного распределения плотности тока к Гауссовому, температурные режимы обоих мишеней изменяются схожим образом. Проведён сравнительный анализ тепловых потоков от подложек мишеней в воду для различных вариантов Гауссова распределения плотности облучающего тока. Показано, что максимальный выигрыш в критических значениях тепловых потоков в воду при переходе к ЛНМ достигается при однородном распределении плотности тока через мишень, где коэффициент эффективности, т.е. отношение предельно допустимых токов, равен 1.45. При Гауссовых распределениях плотности тока выигрыш монотонно уменьшается по мере уменьшения параметра среднеквадратичного отклонения Sigma, но остаётся на приемлемом с практической точки зрения уровне вплоть до минимального рассмотренного значения Sigma = 3.14 мм, при котором коэффициент эффективности опускается до значения 1.29.

1. Введение

Современные ускорители укомплектованы отлаженными, надёжно работающими системами охлаждения мишеней, способными обеспечить стабильное производство радиоизотопов [1, 2]. Однако при коммерческом применении радиоизотопов требуется, чтобы интенсивность пучка ускорителя была как можно выше, а объёмы производства изотопов достигали технологического предела. Часто именно стандартные системы охлаждения мишеней являются серьёзным препятствием на этом пути, что побуждает вести постоянный поиск новых технических решений в таких системах, которые хоть и не претендуют на универсальность, но дают положительный эффект в каждом конкретном случае

[3–6]. Мы предложили новый вариант конструкции мишени и её подложки с гофрированным рельефом для мишенного модуля Nirta Solid Compact [7], который позволил увеличить поверхность охлаждения мишени и её подложки более, чем в два раза [8–10]. Такая конструкция мишени с соответствующей подложкой была названа локально-наклонной мишенью (ЛНМ). В работах [9, 10] был проведен анализ влияния материала подложек на тепловые характеристики ЛНМ из прессованного порошка молибдена, используемого при производстве медицинского радиоизотопа Tc-99m. Анализ проводился методом численного моделирования в программе ANSYS [11] при упрощающем расчёты предположении, что ток пучка протонов имеет однородное распределение по сечению мишени. В настоящей работе мы провели аналогичное исследование тепловых характеристик аксиально симметричных локально-наклонных мишеней с подложками из ниобия при более реалистичном Гауссовом распределения плотности тока протонного пучка. На актуальность такого исследования указывают результаты работ [6, 12–14]. Экспериментально Гауссово распределение плотности тока протонного пучка наблюдалось на циклотроне С18 нашего научного центра с помощью станции вибрирующих струн [15]. Напрямую использовать количественные данные для профиля пучка, полученные в экспериментах с вибрирующими струнами [15, 16], в наших расчётах было некорректно, поскольку измерения профиля проводились на довольно значительном удалении от выходного окна и на воздухе. Поэтому мы решили провести серию пробных расчётов тепловых свойств мишеней для трёх «показательных» Гауссовых распределений со значениями параметров Sigma, выбранными по критериям «слабого», «среднего» и «сильного» отклонений от однородного распределения.

2. Описание модели для расчётов

Для упрощения процедуры расчётов мы использовали модель с задаваемой таблично ступенчатой аппроксимацией аксиально симметричных Гауссовых распределений. Расчёты проводились на мишенях, также обладающих аксиальной симметрией: стандартной плоской мишени (СПМ) и двойной аксиально симметричной мишени (ДАМ) с подложками из ниобия. В новой модели поперечное сечение пучка, а также сами мишени и их подложки были условно разбиты на 6 кольцевых зон, как показано на рис.1а, b для СПМ и ДАМ, соответственно. Границы между зонами удалены друг от друга в радиальном направлении на 1 мм. Как видно из рисунка, в результате перехода к модели с шести-зонной структурой вместо двух тел с постоянным энерговыделением – мишени и подложки, образовалось 12 таких тел. В остальном мы придерживаемся положений, принятых для исходной модели [9, 10], которую в новой терминологии можно также считать ступенчатой, но только одно-зонной.

Подчеркнём, что разбиение мишени и подложки на зоны является виртуальной процедурой, введенной только для организации вычислений. В расчётах предполагалось, что в пределах одной зоны плотности облучающих токов протонов, а, следовательно, и удельные объёмные энерговыделения в новообразованных доменах постоянны, но их численные значения распределены между зонами так, чтобы получилось ступенчатое распределение по возможности точно ап-



Рис.1. Сечение (а) СПМ и (b) ДАМ плоскостью симметрии. Мишень расположена в центральной выемке над подложкой. Показано расположение зон облучения. Пучок протонов падает на мишень сверху перпендикулярно к её поверхности и имеет такую же зонную структуру. Цифрами обозначены номера зон, численно совпадающие с их наружными радиусами, выраженными в миллиметрах. Начало координат оси Z совпадает с центром первой зоны. Мишень и подложка целиком расположены между отметками –6 и +6 мм. Физически каждая зона состоит из двух расположенных друг над другом доменов.

проксимирующее одно из гладких Гауссовых распределений. Для получения результатов, сопоставимых с опубликованными ранее, суммарный ток через мишень по всем шести зонам нормировался на значение 10 мкА, а суммарное энерговыделение во всех 12 доменах – на 180 Вт, что соответствует параметрам предыдущих моделей с однородным распределением плотности тока [9, 10]. При нормировке соотношение между плотностями тока в зонах не нарушалось. Расчёты были проведены для трёх вариантов ступенчатых распределений, имитирующих Гауссовы распределения со «слабым» (+18%), «средним» (+46%) и «сильным» (+100%) превышением плотности тока в центрах мишеней относительно однородного распределения, что достигалось при следующих значениях среднеквадратичных отклонений *Sigma*: 4.70, 3.89 и 3.14 мм, соответственно.

Дискретность и условие нормировки всех распределений плотности тока на одно и то же значение полного тока через мишень привели к интересной особенности: графики всех рассмотренных распределений плотности тока, включая однородное, частично пересекались и совпадали в области ±4 мм на оси Z.

На рис. 2 представлены графики вычисленных значений температуры поверхности СПМ с однородным и тремя указанными Гауссовыми распределениями плотности тока. На аналогичных графиках температуры для ДАМ (рис. 3) имеется модуляция, обусловленная рельефом мишени и подложки [9, 10], не связанная со ступенчатой структурой облучающего тока.

Влияние ступенек в распределениях плотности тока в исходных данных на вычисленную температуру СПМ (рис.2) проявилось в виде незначительных по амплитуде и протяжённости возмущений температуры, расположенных на графиках в окрестностях переходов между соседними зонами, т.е. при целочисленных значениях Z. Такие возмущения наиболее заметны на кривых, соответствующих минимальному значению Sigma = 3.14 мм, в то время как на остальных графиках они едва заметны и, из-за своей малой амплитуды, не сказываются на общем характере полученных зависимостей.



Рис.2. Графики распределения температуры по поверхности СПМ с однородным (1) и тремя Гауссовыми распределениями плотности тока с последовательно уменьшающимися значениями *Sigma*: 4.70 (2), 3.89 (3) и 3.14 мм (4). Точками отображены данные, сгенерированные программой ANSYS, линиями – их кусочно-линейная аппроксимация без какой-либо дополнительной математической обработки. Как и на рис. 1, границы зон расположены на целочисленных отметках от ± 1 до ± 6 .



Рис.3. Распределение температуры по поверхности ДАМ с однородным (1) и тремя Гауссовыми распределениями плотности тока с последовательно уменьшающимися значениями Sigma: 4.70 (2), 3.89 (3) и 3.14 мм (4). Графики представляют собой кусочно-линейную аппроксимацию вычисленных в программе ANSYS и сглаженных в программе Origin значений. В результате сглаживания видимые изменения на графиках произошли только в окрестностях локальных экстремумов – были скруглены мелкомасштабные остроугольные изломы на кривых, модуляция кривых осталась без видимых изменений.

Возмущения температуры СПМ вблизи границ зон можно также обнаружить и на графике для шести-зонного, но однородного распределения плотности тока. В этом случае возмущения являются артефактами дискретной по своей природе вычислительной процедуры, для которой виртуальные границы между зонами являются реальными, поскольку в вычислительной схеме разные зоны представ-

лены разными доменами. Мы рассматриваем малость возмущений при однородном распределении плотности тока, как подтверждение корректности предложенной схемы вычислений. Это связано с тем, что шести-зонная модель с однородным распределением плотности тока по сути совпадает с исходной «одно-зонной» моделью на всём диапазоне значений Z, за исключением границ зон. Основываясь на вышеупомянутых результатах для СПМ, мы распространили заключение о малости возмущений в вычисленных значениях температуры и на аналогичные результаты для ДАМ.

В приведенном на рис.2 примере для СПМ возмущенные участки графиков температуры настолько малы по величине и протяжённости, что могут быть скорректированы путём замены всего нескольких вычисленных значений на интерполированные данные из соседних невозмущённых фрагментов кривых. Для иллюстрации такой возможности на рис. 2 процедура интерполяции проведена «вручную» для графика с *Sigma* = 3.14 на границе между первой и второй зонами (вокруг точек $Z = \pm 1$). Для этого значения температуры были заменены на интерполированные всего в двух точках $Z = \pm 1$.

Исходные графики с результатами вычислений в случае необходимости можно автоматически очистить от описанных выше возмущений с помощью подходящих стандартных процедур сглаживания данных. В качестве примера на рис.3 приведены графики температурных распределений для ДАМ, сглаженные процедурой Loess в программе Origin [17]. В результате сглаживания большинство данных претерпело незначительные изменения в пределах $\pm 1\%$, что отразилось только на соответствующих числах, но было совершенно незаметно на графиках. Заметные изменения формы кривых, выраженные в сглаживании острых изломов, произошли только вблизи целых и полуцелых значений Z. При этом крупномасштабная модуляция кривых по оси Z, обусловленная рельефом поверхности мишени, осталась неизменной. Именно такой характер сглаживания стал главным критерием при выборе указанной процедуры. Наибольшие изменения данных при сглаживании наблюдались в окрестности остроугольных минимумов при полуцелых значениях Z, но и здесь они не превысили 5%. В последнем случае изломы на кривых не были связаны с границами зон, а были объективным отражением рельефа ДАМ. Действительно, на полуцелых значениях Z расположены долины рельефа – самые глубокие остроугольные участки гофров, заметные на рис. 1b в центрах зон.

Математический анализ приведенных на рис.2 графиков температурных распределений в программе Origin показал, что в СПМ они представляют собой сумму двух вкладов: постоянного (не зависящего от координаты), и переменного (Гауссова). Сразу же отметим, что в данном контексте речь идет о новом «температурном» Гауссовом распределении, а не о том, которое обсуждалось выше при аппроксимации ступенчатых распределений плотности тока. Такая аппроксимация вычисленных программой ANSYS данных (фитинг) оказалась настолько эффективной, что мы не стали приводить сравнительные графики ввиду их визуальной неотличимости от рис. 2 во всём диапазоне значений *Z*, кроме окрестностей целочисленных значений, где фитинг-кривые остались идеально гладкими в отличие от оригинальных с возмущениями. Чтобы избежать путаницы, для параметра *Sigma*, относящегося к Гауссовому распределению температуры, в табл. 1 введено обозначение *Sigma-T*. Описанный вариант обработки может являться альтернативой сглаживания, но только для случая СПМ, когда физический смысл имеют гладкие в целом кривые.

Параметр <i>Sigma</i> в Гауссовом распределении для плотности тока, мм	Постоянн распре, темпера	стоянный вклад в Координаты центра распределение емпературы, °С Координаты центра Гауссова распределения температуры, мм			Параметр <i>Sigma-T</i> Гауссова распределения температуры, мм		
Значение	Значение	Стандарт- Вначение ная ошибка		Стандарт- ная ошибка	Значение	Стандарт- ная ошибка	
Uniform	36.99	0.18	-0.18	0.01	2.81	0.04	
4.7	34.78	0.18	-0.10	0.01	2.84	0.03	
3.89	32.24	0.20	-0.07	0.01	2.74	0.02	
3.14	29.03	0.23	-0.05	0.01	2.58	0.02	

Табл.1. Параметры Гуссова распределения температуры для СПМ

Подобную математическую обработку температурных зависимостей для ДАМ с целью выделения возможного Гауссова вклада мы не проводили, поскольку такая процедура привела бы к необоснованному сглаживанию характерной для этих данных модуляции, вызванной рельефом мишени.

Приведенное выше рассмотрение показывает, что в тепловых расчётах использование модельного ступенчатого распределения плотности тока вместо гладкого распределения Гаусса [6, 12–14] обосновано. Кроме того, оно должно быть пригодно и для «негауссовых» вариантов неоднородных распределений с сопоставимыми по величине скачками значений между ступенями, поскольку в описанном выше подходе не использовались специфические свойства самого распределения Гаусса. Ступенчатый характер входных данных отражается на результатах вычислений термодинамических величин в программе ANSYS в виде незначительных по амплитуде и протяжённости возмущений в окрестностях переходов между соседними зонами. При необходимости их можно устранить стандартной процедурой Loess сглаживания данных в программе Origin.

3. Обсуждение полученных результатов

Фактические данные по распределениям температуры на поверхности мишеней приведены в предыдущем разделе на рис.2 и рис.3. Эти рисунки показывают изменение температурных полей мишеней при переходе от однородного распределения плотности тока ко всё более выраженному распределению Гаусса с последовательно уменьшающимися значениями *Sigma*. В обоих видах мишеней эти процессы во многом схожи, несмотря на визуальные различия, вызванные сильной исходной модуляцией графиков для ДАМ, из-за их гофрированного рельефа. Действительно, в зонах с первой по четвёртую происходит примерно одинаковый рост температуры обеих мишеней по мере уменьшения параметра Sigma. В центре мишеней прирост температуры максимален: при переходе от однородного распределения к распределению Гаусса с минимальным значением Sigma он составляет примерно 23°С как для СПМ, так и для ДАМ. На границе четвёртой и пятой зон при $Z \cong \pm 4$ мм все графики пересекаются в одной точке. Точки пересечения графиков для СПМ и ДАМ совпадают по оси Z, но по оси температур точка пересечения для ДАМ лежит примерно на 4°С ниже. Более того, все графики для ДАМ (рис.3) в среднем на столько же ниже соответствующих графиков для СПМ (рис.2) по всему диапазону Z. В пятой и шестой зонах порядок температурных распределений меняется на обратный: самые высокие температуры наблюдаются при однородном распределении, а самые низкие – при Гауссовом с минимальным значением параметра Sigma = 3.14 мм. На границе шестой зоны максимальная разница в температуре между распределениями существенно меньше, чем в центре, и равна примерно 5°С. Все распределения температур в целом слегка асимметричны. Это заметно и в центре, и на краях при $Z = \pm 6$ мм. При Z = +6 мм графики расположены примерно на 1°C ниже. Асимметрия проявила себя и в данных, представленных в табл.1 в колонке «Координаты центра...». Действительно, смещение центра распределения в сторону отрицательных значений означает, что до точки Z = +6 мм расстояние больше, чем до точки Z = -6 мм и на более удалённом конце график симметричного по своей сути распределения Гаусса опускается несколько ниже. Асимметрия обусловлена охлаждающим действием потока гелия, направленным вдоль оси Z. С этим потоком связана ещё одна особенность всех температурных зависимостей в ДАМ: максимумы температуры на всех кривых соответствуют вершинам рельефа мишени, а минимумы – долинам. Это необычно, поскольку фрагменты нагретых тел, выступающие в поток, обычно охлаждаются лучше остальных, поэтому их температура должна быть ниже. Данная аномалия не обусловлена неоднородностью распределения плотности тока и наблюдалась нами ранее на «одно-зонных» вариантах ЛНМ [9, 10]. Причина её появления в том, что мишень в тепловом смысле не является изолированным телом, контактирующим только с потоком гелия, она обменивается теплом ещё и с подложкой, а через неё и с водой. В долинах рельефа мишени усиливается передача тепла от мишени в воду через подложку, что локально снижает их температуру. В области хребтов происходит обратный процесс: здесь мишень получает дополнительное тепло от подложки, из-за чего тепловой поток от хребтов в гелий увеличивается настолько, что приводит к росту их температуры [9, 10].

Приведенные выше результаты показывают, что при переходе от однородного распределения плотности облучающего тока к распределению Гаусса температурные режимы СПМ и ДАМ изменяются схожим образом. Мы расцениваем это как доказательство того, что и при использовании ДАМ вместо стандартных плоских мишеней не возникает дополнительных рисков перегрева. Гофрированный рельеф ДАМ не приводит к нежелательному взаимодействию с неоднородностью распределения облучающего тока.

Остаётся актуальным вопрос о справедливости заключения, сделанного в работах [9, 10] о возможности увеличения предельно допустимого тока облучения мишеней даже при неоднородном распределении плотности тока. В мишенях с однородным распределением тока этот вывод был основан на том, что максимальный тепловой поток в охлаждающую воду от ЛНМ, как правило, ниже, чем от СПМ. При этом предполагалось, что критический тепловой поток [18] от подложки в воду одинаков для обоих типов мишеней, так как система охлаждения у них идентична.

На рис. 4a,b приведены примеры сгенерированных программой ANSYS контуров распределений тепловых потоков в воду от подложек в ДАМ для однородного и Гауссова, соответственно, распределений плотности тока. Для рисунка выбрано распределение Гаусса со значением *Sigma* = 3.14 мм, то есть с наибольшим исследованным отклонением от однородности. Обращает на себя внимание плавность переходов между гофрами-зонами, несмотря на ступенчатый характер распределения плотности облучающего тока, а, следовательно, и энерговыделения в этих зонах.

Это является ещё одним подтверждением допустимости ступенчатой аппроксимации входных данных в программу ANSYS. Подобным образом ведут себя контуры и для остальных значений *Sigma*, а также для СПМ, где аналогичная картина выглядит даже проще из-за отсутствия рельефа на подложке. При однородном распределении плотности тока поток тепла в воду имеет максимум в пятой зоне, причём идёт он с обращённого к центру склона соответствующего гофра (рис. 4а). При переходе к распределениям Гаусса с разными значениями *Sigma* максимум тепловыделения постепенно смещается к центру подложки по мере уменьшения *Sigma*. На рис. 4b показано конечное состояние при *Sigma* = 3.14 мм: здесь максимум тепловыделения дошёл до первой зоны, причём плавность спада тепловыделения от центра к периферии сохраняется на всей поверхности подложки.

Количественные характеристики рассмотренных этапов перехода от однородного распределения плотности тока к распределению Гаусса представлены в табл.2, где приведены максимальные значения тепловых потоков из подложки в воду для всех рассмотренных вариантов распределения плотности тока.

Коэффициент k в последней строке таблицы представляет собой отношение чисел, приведённых в предыдущих строках. Численное значение коэффициента k получено для расчётного тока через мишень 10 мкА, однако оно остается неиз-



Рис.4. Контуры распределений тепловых потоков в воду от подложек в ДАМ для (а) однородного и (b) Гауссова распределений плотности тока со значением Sigma = 3.14 мм.

Тип мишени, еди-	Вид распределения плотности тока / параметр Sigma						
ница измерения	Однородное	Гауссово/4.70	Гауссово/3.89	Гауссово/3.14			
СПМ, МВт / м ²	1.80	1.80	2.02	2.57			
ДАМ, МВт / м ²	1.25	1.24	1.57	2.04			
<i>k</i> = [СПМ] / [ДАМ]	1.45	1.44	1.29	1.26			

Табл.2. Максимальные значения теплового потока из подложки мишени в воду

менным и для других значений тока, поскольку в модели отсутствуют нелинейные элементы. Этот тезис подтверждён также прямыми вычислениями. Численные данные из таблицы можно обобщить следующим образом: одно и то же значение теплового потока в ДАМ достигается при токах в k раз больших, чем соответствующие токи в СПМ. Мы полагаем, что это заключение верно и для предельных критических значений тепловых потоков в воду, которые в рассматриваемой модели предполагаются одинаковыми для обоих типов мишеней. Таким образом, коэффициент k показывает во сколько раз предельный ток для ДАМ будет больше предельного тока для СПМ при достижении критического теплового потока в воду. По существу, коэффициент k является количественным показателем эффективности ДАМ по сравнению с СПМ при различных вариантах распределения облучающего тока по поверхности мишени с ниобиевой подложкой. Численные данные в таблице демонстрируют тенденцию к снижению эффективности ДАМ по мере удаления от однородного распределения. Отмеченное снижение эффективности, на наш взгляд, не критично с практической точки зрения. Следовательно, при неоднородном Гауссовом распределении облучающего тока основные преимущества ДАМ, отмеченные в работах [9, 10], сохраняются.

4. Заключение

В работе представлена многозонная модель двух видов мишеней: стандартной плоской (СПМ) и гофрированной двойной аксиально-симметричной (ДАМ). На примере тепловых расчётов в программе ANSYS обоснована допустимость шести-зонной модели со ступенчатой аппроксимацией входных данных для плотности тока, то есть внутреннего объёмного энерговыделения. Анализ полученных температурных зависимостей для плоского варианта ЛНМ показал, что они представляют собой сумму двух вкладов: постоянного (не зависящего от координаты) и переменного (Гауссова).

Проведено сравнительное исследование влияния однородного и неоднородных Гауссовых распределений плотности облучающего тока на температуру мишеней.

Показано, что при переходе от однородного распределения плотности облучающего тока к Гауссовому температурные режимы обоих типов мишеней, СПМ и ДАМ, изменяются подобным образом, исключая тем самым возникновение дополнительных рисков из-за перегрева ДАМ вследствие взаимовлияния гофрированного рельефа такой мишени и неоднородности в распределении облучающего тока. Установлено, что максимальный выигрыш в критических значениях тепловых потоков в воду при переходе к ЛНМ достигается при однородном распределении плотности тока, что позволяет увеличить предельно допустимый ток облучения в 1.45 раза. При Гауссовых распределениях плотности тока выигрыш монотонно уменьшается по мере снижения параметра *Sigma*, вплоть до его минимального рассмотренного значения 3.14 мм. Однако даже в этом случае выигрыш остаётся на приемлемом уровне, составляя 1.29 раза.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке МОНКС РА в рамках научного проекта 24LCG-2G028 и проекта Международного Агентства по Атомной Энергии IAEA Coordinated Research Project F22073 "Production of cyclotron-based Gallium-68 radioisotope and related radiopharmaceuticals" – "Development of Gallium-68 Radioisotope at AANL (YerPhI) under C18 Proton Beam of Armenian Cyclotron".

ЛИТЕРАТУРА

- 1. https://www.elexcomm.com/products
- 2. https://advancedcyclotron.com/targetry/
- 3. S.C. Mun, G.C. Kang, C.M. Kang, J.Y. Kim, K.C. Lee, S. Y. Oh. Nuclear Engineering and Technology, 56, 3268, (2024).
- N. Zhuang, K. Qin, L. Meng, H. Zhao, X. Tang. Applied Thermal Engineering, 265, 125587, (2025).
- P. Selvaraj, K. Natesan, K. Velusamy, T. Sundararajan. Heat Transfer Engineering, 40, 193, (2019).
- R.A. Pavan, W.Z. Gelbart, S.K. Zeisle. J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 257, 203, (2003).
- Nirta Solid Compact Model TS06. Operating Manual, ELEX COMMERCE, Belgrade, Serbia (2010).
- 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. А. Аветисян, Р. Даллакян, Н. Добровольский, А. Григорян, А. Манукян, А. Мелконян, И. Синенко. Известия НАН Армении, Физика, **59**, 3 (2024).
- 10. Р. Даллакян, Н. Добровольский, А. Григорян, А. Манукян, И. Синенко. Известия НАН Армении, Физика, 59, 131 (2024).
- 11. https://www.ansys.com/products/fluids/ansys-cfx
- 12. G. Sciacca, J. Esposito. Modelling of Cyclotron Solid Targets Thermal Behavior During Irradiation, LNL Annual Report, 90 (2021).
- 13. F.M. Nortier, N.R. Stevenson, W.Z. Gelbart. NIM Section A, 355, 236 (1995).
- 14. Г.С. Арутюнян, Известия НАН Армении, Физика, 51, 139 (2016).
- M.A. Aginian, A.P. Aprahamian, S.G. Arutunian, et al., J. Contemp. Phys., 56, 297 (2021).
- 16. С.Г. Арутюнян, А.П. Апраамян, А.В. Маргарян, Л.М. Лазарев, А.А. Манукян, Г.В. Мирзоян, Э.Г. Лазарева, Р.С. Геворгян, М. Chung. Известия НАН Армении, Физика, 59, 439 (2024).
- 17. https://www.originlab.com/index.aspx?go=Products/Origin
- 18. Y.A. Cengel. Heat Transfer a Practical Approach. New York: McGraw Hill, 1997.

ANALYSIS OF THERMAL CHARACTERISTICS OF LOCALLY INCLINED TARGETS UNDER IRRADIATION BY PROTON BEAMS WITH A GAUSSIAN CURRENT DISTRIBUTION

R. DALLAKYAN, N. DOBROVOLSKI, A. GRIGORYAN, A. MANUKYAN, I. SINENKO, D. ARSHAKYAN

The applicability of the stepwise approximation of the Gaussian current density distribution is justified for calculating the thermal properties of flat and locally inclined targets (LIT) in the ANSYS program. Within the framework of a six-zone model, numerical simulation of the temperature of flat and axially symmetric LIT was carried out for uniform and several variations of Gaussian distributions of the irradiating current density. The analysis of the obtained temperature dependencies for the flat target variant showed that they represent the sum of two contributions — a constant one, independent of the coordinate, and a variable, Gaussian one. It has been shown that transitioning from a uniform current density distribution to a Gaussian one results in similar changes in the temperature regimes of both targets. This prevents additional risks of LIT overheating due to the combined influence of the target's corrugated surface and the inhomogeneity of the irradiating current in its Gaussian distribution. A comparative analysis of heat fluxes from the target holder into the water was carried out for various Gaussian distributions of the irradiating current density. It has been shown that the maximum gain in critical heat flux values into the water when choosing LIT is achieved in case of uniform current density distribution through the target, where the efficiency coefficient, i.e., the ratio of the maximum allowed currents, is 1.45. For Gaussian current density distributions, the gain monotonically decreases when the standard deviation parameter Sigma decreases but remains practically acceptable, with an efficiency coefficient of 1.29, down to the minimum considered value of Sigma = 3.14 mm.

Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.14–23 (2025) УДК 539.172.12 DOI:10.54503/0002-3035-2025-60.1-14

ИЗУЧЕНИЕ ФУНКЦИЙ ВОЗБУЖДЕНИЯ ПРОТОН-ИНДУЦИРОВАННЫХ РЕАКЦИЙ НА ПРИРОДНОМ ОЛОВЕ ПРИ ПОМОЩИ КОДОВ TALYS 1.96 И EMPIRE 3.2

А.Ю. ПЕТРОСЯН*

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

*e-mail: anush.petrosyan@aanl.am

(Поступила в редакцию 4 декабря 2024 г.)

Исследованы функции возбуждения протон-индуцированных реакций на натуральном олове ^{nat}Sn(p,x)^{118m;120m;122;124}Sb, ^{113;117m}Sn с использованием статистических ядерных кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2 в диапазоне энергий протонов от порога реакций до 70 МэВ. Проведено сравнение теоретических расчетов с экспериментальными данными, представленными в базе EXFOR. Степень согласованности экспериментальных и теоретических результатов была оценена с помощью средневзвешенного статистического параметра относительного отклонения. Актуальность исследования обусловлена также тем, что некоторые из полученных изотопов (124 Sb, 122 Sb и 117m Sn) находят практическое применение.

1. Введение

Функции возбуждения протон-индуцированных ядерных реакций в области промежуточных энергий приобретают всё большее значение благодаря широкому спектру их применений. Среди них — производство медицинских радиоизотопов, изучение радиационных и экранирующих эффектов в космосе, а также разработка технологий для трансмутации ядерных отходов и производства энергии с использованием ускорителей. Данные о функциях возбуждения ядерных продуктов важны для проверки различных моделей, описывающих механизм реакции, оптимизации выхода продуктов и оценки сопутствующих радиоизотопов.

Существует ряд работ, посвященных исследованию сечений протон-индуцированных реакций на природном олове в области средних энергий, в частности, в работе [1] представлены значения функций возбуждения для реакций ^{nat}Sn(p,xn) в широком диапазоне энергий протонов — от пороговых значений до 65 МэВ. В публикации [2] приведены сечения для образования радионуклидов сурьмы (Sb) в реакциях на мишени ^{nat}Sn при энергиях протонов до 20 МэВ. Работа [3] содержит результаты по сечениям реакций ^{117,118,119,120,122,124}Sn(p,n) в диапазоне энергий протонов 2.6–7 МэВ, где вторичные нейтроны регистрировались нейтронным детектором с 4 π -геометрией. В исследовании [4] доложены результаты измерений сечений протон-индуцированных реакций на природном олове в интервале энергий от пороговой до 40 МэВ. Особое внимание уделено образованию радионуклида ¹²⁴Sb, представляющего интерес для прикладных задач [5–9]. В диапазоне энергий протонов до 18 МэВ в работе [10] представлены результаты измерений функций возбуждений реакций на обогащенных мишенях ¹¹⁴Sn и ¹²⁰Sn.

В настоящей работе обсуждаются и сравниваются ранее опубликованные экспериментальные результаты из работ [1–10] с теоретическими вычислениями, выполненными с использованием кодов TALYS 1.96 [11] и EMPIRE 3.2 [12]. Согласованность экспериментальных данных [1–10] с результатами теоретических расчетов анализировалась с помощью статистического метода. Отклонения между экспериментальными и расчетными значениями сечений оценивались как мера доверия к использованным ядерным моделям.

2. Коды и их модели

Моделирование поперечных сечений ядерных реакций может выполняться с использованием двух программных пакетов — TALYS и EMPIRE, основанных на формализме Хаузера–Фешбаха (Hauser–Feshbach). Входные параметры обоих кодов задаются на основе библиотеки RIPL-3 (Reference Input Parameter Library). Поскольку TALYS и EMPIRE используют одинаковый физический формализм, схожие результаты, полученные при моделировании одной и той же реакции, свидетельствуют о корректной работе программных пакетов и подтверждают надежность расчетов.

В дальнейшем будет опубликовано сравнение теоретически вычисленных функций возбуждения реакций $^{nat}Sn(p,x)$ с использованием кодов TALYS и EMPIRE с измеренными на выведенном протонном пучке циклотрона C18/18.

2.1. Kod TALYS 1.96

TALYS — это компьютерная программа для анализа и прогнозирования ядерных реакций. Основной целью ее создания является моделирование ядерных реакций с участием нейтронов, фотонов, протонов, дейтронов, тритонов, ³Не- и альфа-частиц в диапазоне энергий ~1эВ – 200 МэВ и для мишеней с массой 12 и тяжелее.

Существуют три феноменологические модели плотности уровней и три варианта для микроскопических плотностей уровней. Для каждого нуклида, участвующего в реакции, можно выбрать подходящую модель плотности уровней: ldmodel 1 – Постоянная температура и модель Ферми-газа (CTM); ldmodel 2 – Moдель Ферми-газа с обратным смещением (BFM); ldmodel 3 – Обобщенная модель сверхтекучести (GSM); ldmodel 4 – Плотности уровней Скирма–Хартри– Фока–Боголюбова из числовых таблиц (SHFB); ldmodel 5 – Плотности уровней Гогни–Хартри–Фока–Боголюбова из числовых таблиц (GHFB); ldmodel 6 – Температурно-зависимые плотности уровней Гогни–Хартри–Фока–Боголюбова из числовых таблиц (T-GHFB).

2.2. Kod EMPIRE 3.2

EMPIRE — это модульная система кодов ядерных реакций, включающая различные ядерные модели и предназначенная для расчетов в широком диапазоне энергий и падающих частиц. В качестве падающей частицы могут быть выбраны фотоны, нуклоны, дейтроны, тритоны, гелионы (³He), α-частицы, а также легкие и тяжелые ионы. Диапазон энергий начинается сразу выше области резонансов для первичных нейтронов и простирается до нескольких сотен МэВ для реакций, вызванных тяжелыми ионами. Особенностью EMPIRE является набор из пяти пред-равновесных (preequilibrium – PE) модулей, которые используются для анализа эмиссии частиц, кластеров и γ-квантов из составного ядра до того, как оно достигнет теплового равновесия. Пять встроенных модулей PE в EMPIRE включают две квантово-механические формулировки (MSD и MSC) и три классических подхода (экситонная модель DEGAS, PCROSS и моделирование Монте-Карло HMS).

Вычисления проводились для следующих комбинаций параметров: EMPIRE-1 – PCROSS=0, HMS=0; EMPIRE-2 – PCROSS=1, HMS=0; EMPIRE-3 – PCROSS=0, HMS=1; EMPIRE-4 – PCROSS=1, HMS=1.

3. Результаты и их обсуждение

3.1. Методика исследования

Олово (Sn) имеет самое большее число стабильных изотопов – 10 (112 Sn – 0.97%, 114 Sn – 0.66%, 115 Sn – 0.34%, 116 Sn – 14.54%, 117 Sn – 7.68%, 118 Sn – 24.22%, 119 Sn – 8.59%, 120 Sn – 32.58%, 122 Sn – 4.63%, 124 Sn – 5.79%). Вычисления функций возбуждения для протон-индуцированных реакций nat Sn(p,x) проводились для всех выходных каналов.

В табл.1 приведены пороги реакций и периоды полураспада исследуемых нуклидов.

Нуклиды	Реакции образования	Порог реакции, МэВ	Период полураспада, <i>T</i> _{1/2}		
^{124g} Sb	124 Sn(p,n)	1.406	60.209 дн		
122g C L	$^{122}Sn(p,n)$	2.41	2 604		
06°	$^{124}Sn(p,3n)$	16.96	2.094 ДН		
120mSb	¹²⁰ Sn(p,n)	3.69	5 76		
50	$^{122}Sn(p,3n)$	18.8	5.70 ДН		
	118 Sn(p,n)	4.729			
	$^{119}Sn(p,2n)$	11.267			
118m Sb	120 Sn(p,3n)	20.45	5.01 ч		
	$^{122}Sn(p,5n)$	35.55			
	124 Sn(p,7n)	50.09			
	¹¹⁷ Sn(p,p`)	0.317			
	¹¹⁸ Sn(p,pn)	9.72			
117m S m	¹¹⁹ Sn(p,p2n)	16.26	12.04 ли		
511	¹²⁰ Sn(p,p3n)	25.44	13.94 дн		
	¹²² Sn(p,p5n)	40.55			
	¹²⁴ Sn(p,p7n)	55.09			
	¹¹⁴ Sn(p,pn)	10.39			
	¹¹⁵ Sn(p,p2n)	18.03			
113 S m	¹¹⁶ Sn(p,p3n)	27.65	115.08		
- 511	$\overline{^{117}}$ Sn(p,p4n)	34.65	115.00 дн		
	$\overline{^{118}}$ Sn(p,p5n)	44.05			
	¹¹⁹ Sn(p,p6n)	50.59			

Табл.1. Исследуемые нуклиды, пороги реакций их образования и периоды полураспада

Сравнения экспериментальных функций возбуждения для реакций ^{nat}Sn(p,x)^{118m;120m;122;124}Sb, ^{113;117m}Sn с теоретическими вычислениями, полученными при помощи кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2, приведены на рис.1а–рис.5а и рис.1b–рис.5b, соответственно.

На рис.1а,b для реакции ¹²⁴Sn(p,n)¹²⁴Sb совместно с вычисленными функциями возбуждения представлены экспериментальные данные [1, 3, 4, 6–9]. Поскольку в протон-индуцированной реакции ^{nat}Sn(p,n)¹²⁴Sb образование ¹²⁴Sb происходит только на изотопе ¹²⁴Sn, то для сравнения с данными других авторов при вычислениях рассматривалась обогащенная мишень с учетом природной распространенности ¹²⁴Sn. Изотоп ¹²⁴Sb имеет долгоживущее (60.209 дня) основное состояние и два короткоживущих метастабильных состояния с периодами полураспада 20.2 (100% IT) и 1.55 мин (75% IT, 25% β⁻). Поэтому представленные теоретические и экспериментальные данные относятся к состоянию ^{124g+100%m1+75%m2}Sb. Из рис.1 видно, что экспериментальные данные во всей рассматриваемой области энергий протонов в пределах ошибок достаточно хорошо согласуются с теоретически вычисленными сечениями посредством обоих кодов.



Рис.1. Функции возбуждения для реакции 124 Sn(p,n) 124 Sb, вычисленные кодами (a) TALYS 1.96 и (b) EMPIRE 3.2, совместно с экспериментальными данными [1, 3, 4, 6–9].

Вычисленные функции возбуждения для реакции $^{nat}Sn(p,xn)^{122}Sb$ совместно с экспериментальными данными [1, 4, 9] приведены на рис.2a,b. Как видно из рисунков, оба кода хорошо согласуются с экспериментальными данными. Четко выраженные на рисунках два пика соответствуют образованию ^{122}Sb через каналы (p,n) и (p,2n) с порогами 2.41 и 16.96 МэВ, соответственно.

На рис.3 представлены вычисленные функции возбуждения для реакции ^{nat}Sn(p,xn)^{118m}Sb совместно с экспериментальными данными [1, 4]. Из рис.За видно, что все модели кода TALYS 1.96 достаточно хорошо согласуются с экспериментальными данными различных авторов. Как следует из рис.3b, значения функций возбуждения при EMPIRE-1 значительно превосходят экспериментальные данные.



Рис.2. Функции возбуждения для реакции $^{nat}Sn(p,xn)^{122}Sb$, вычисленные кодами (a) TALYS 1.96 и (b) EMPIRE 3.2, совместно с экспериментальными данными [1, 4, 9].



Рис.3. Функции возбуждения для реакции $^{nat}Sn(p,xn)^{118m}Sb$, вычисленные кодами (a) TALYS 1.96 и (b) EMPIRE 3.2, совместно с экспериментальными данными [1, 4].



Рис.4. Функции возбуждения для реакции ^{nat}Sn(p,pxn)^{117m}Sn, вычисленные кодами (a) TALYS 1.96 и (b) EMPIRE 3.2, совместно с экспериментальными данными [1, 4].

Для реакции ^{nat}Sn(p,pxn)^{117m}Sn вычисленные функции возбуждения совместно с экспериментальными данными [1, 4] представлены на рис.4. Как видно из рис.4а, экспериментальные данные [1, 4] согласуются между собой, однако значительно ниже вычислений посредством кода TALYS 1.96 с использованием различных моделей. Вычисления посредством кода EMPIRE 3.2 (рис.4b) в пределах ошибок согласуются с экспериментальными данными [1, 4] кроме модели EMPIRE-1, предсказания которой существенно ниже экспериментальных данных.

На рис.5 представлены вычисленные функции возбуждения для реакции $^{nat}Sn(p,pxn)^{113}Sn$ совместно с экспериментальными данными [1, 4]. Как следует из рис.5а, экспериментальные данные для реакции $^{nat}Sn(p,pxn)^{113}Sn$ достаточно хорошо описываются результатами вычислений функций возбуждения посредством некоторых моделей TALYS 1.96, особенно SHFB. Модель GSM проявляет спад функции возбуждения при энергии протонов 40 МэВ, который не наблюдается в экспериментальных данных. Из рис.5b следует, что ни одна из моделей кода EMPIRE 3.2 не описывает экспериментальные данные в области энергий протонов выше 40 МэB; более того, при энергиях выше 60 МэB у теоретических кривых наблюдается резкий спад, в то время как у экспериментальных данных наблюдается рост.

Для оценки предсказательной точности ядерных кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2 в зависимости от энергий протонов отдельно проанализирована область энергий до 20 МэВ, где реакции протекают преимущественно по каналу



Рис.5. Функции возбуждения для реакции ^{nat}Sn(p,pxn)¹¹³Sn, вычисленные кодами (a) TALYS 1.96 и (b) EMPIRE 3.2, совместно с экспериментальными данными [1, 4].



Рис.6. Функция возбуждения для реакции 120 Sn(p,n) 120m Sb, вычисленная кодом TALYS 1.96, совместно с экспериментальными данными [1, 4, 7, 10].

(p,n). В области энергий протонов до 18.8 МэВ реакция ^{nat}Sn(p,xn)^{120m}Sb на природной мишени протекает преимущественно по каналу ¹²⁰Sn(p,n)^{120m}Sb (см. табл.1). Для сравнения экспериментальных данных использовались результаты работ, выполненных на природной мишени, с соответствующей поправкой на естественное содержание изотопа ¹²⁰Sn (32.58%). Код EMPIRE 3.2 для данной реакции не разделяет метастабильное и основное состояния, поэтому сравнение с модельными вычислениями проведены только для TALYS 1.96. Для реакции ¹²⁰Sn(p,n)^{120m}Sb функция возбуждения, вычисленная кодом TALYS 1.96, совместно с экспериментальными данными [1, 4, 7, 10] представлена на рис.6. Наблюдается широкий разброс значений как между вычислениями посредством рассматриваемых моделей кода TALYS 1.96, так и между экспериментальными данными различных авторов.

3.2. Статистический анализ

Для установления уровня достоверности ядерных моделей кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2 и выбора наиболее согласованной из них был применен метод статистического анализа, основанный на степени отклонения между экспериментальными и теоретическими значениями сечений. Суть метода заключается в вычислении средневзвешенных отклонений между теоретическими и экспериментальными данными согласно формуле (1) [13]:

$$D = \{\frac{1}{N}\sum |\sigma_i^{\text{calc}} - \sigma_i^{\text{exp}}| / \sigma_i^{\text{exp}}\},\tag{1}$$

где σ_i^{calc} – вычисленное поперечное сечение, σ_i^{exp} – измеренное поперечное сечение, N – число использованных экспериментальных точек.

Величины относительных отклонений сечений исследуемых реакций ^{nat}Sn(p,xn) для использованных в работе моделей кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2 в области энергий протонов до 70 МэВ приведены в табл.2.

Сравнение расчетных результатов показывает, что код TALYS 1.96 обеспечивает лучшее соответствие экспериментальным данным по сравнению с EMPIRE 3.2. Наибольшие отклонения от экспериментальных значений среди

		Относительные отклонения (D)									
Ν	Реакции	акции TALYS 1.96						EMPIRE 3.2			
		CTM	BFM	GSM	SHFB	GHFB	Т-	EMP-	EMP-	EMP-	EMP-
							GHFB	IRE-1	IRE-2	IRE-3	IRE4
62	¹²⁴ Sn(p,n) ¹²⁴ Sb	0.25	0.2	0.29	0.21	0.21	0.28	0.86	0.61	0.38	0.44
62	^{nat} Sn(p,xn) ¹²² Sb	0.26	0.20	0.26	0.19	0.21	0.51	0.48	0.33	0.26	0.27
52	^{nat} Sn(p,xn) ^{118m} Sb	0.25	0.24	0.24	0.25	0.25	0.25	0.50	0.29	0.22	0.21
60	^{nat} Sn(p,pxn) ^{117m} Sn	0.58	0.74	0.93	0.68	1.00	1.62	0.64	0.31	0.26	0.36
59	^{nat} Sn(p,pxn) ¹¹³ Sn	0.47	0.37	0.42	0.38	0.46	0.44	0.60	0.51	0.60	0.50

Табл.2. Относительные отклонения экспериментальных и вычисленных посредством кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2 данных в области энергий протонов до 70 МэВ

всех рассмотренных реакций демонстрирует модель T-GHFB кода TALYS 1.96. В то же время вычисления, выполненные с использованием моделей EMPIRE 3.2, показывают наилучшее согласие с экспериментальными данными при настройках EMPIRE-3 (PCROSS=0, HMS=1).

В табл.3 представлены относительные отклонения экспериментальных и вычисленных посредством кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2 данных в области энергий протонов до 20 МэВ, когда происходит эмиссия одного нейтрона. Как видно из табл.3, в области энергий протонов до 20 МэВ сечения, вычисленные с исполь-

Табл.3. Относительные отклонения экспериментальных и вычисленных посредством кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2 данных в области энергий протонов до 70 МэВ

Ν	Реакции		Относительные отклонения (D)								
			TALYS 1.96						EMPI	RE 3.2	
		CTM	BFM	GSM	SHFB	GHFB	T- GHFB	EMP- IRE-1	EMP- IRE-2	EMP- IRE-3	EMP- IRE-4
27	$^{124}Sn(p,n)$ ^{124}Sb	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35	0.49	0.43	0.37	0.37
30	$^{120}Sn(p,n)$ ^{120m}Sb	0.45	0.45	0.37	0.69	0.64	0.92	_	_	_	_

зованием кода TALYS 1.96, проявляют меньшие отклонения по сравнению с результатами, полученными с помощью кода EMPIRE 3.2. При этом в значениях сечений, рассчитанных с использованием различных моделей одного и того же кода, не наблюдается значительных расхождений.

Рост относительных отклонений при снижении предельной энергии протонов с 70 МэВ (табл.2) до 20 МэВ (табл.3) связан с уменьшением количества доступных для анализа экспериментальных точек. При этом значительное различие в относительных отклонениях между кодами TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2, наблюдаемое при энергиях протонов до 70 МэВ, становится менее выраженным в диапазоне до 20 МэВ. Это указывает на то, что в области низких энергий сечения, вычисленные обоими кодами, демонстрируют лучшее согласие.

4. Заключение

С использованием различных моделей ядерных кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2 были вычислены функции возбуждения для реакций ^{nat}Sn(p,x)^{118m;120m;122;124}Sb, ^{113;117m}Sn. Полученные теоретические значения функций возбуждения сравниваются с экспериментальными данными из базы EXFOR, а также с опубликованными результатами. Проведен статистический анализ экспериментальных данных путем вычисления средневзвешенного относительного отклонения между теоретическими и экспериментальными значениями.

Анализ показал, что в области энергий протонов до 70 МэВ наибольшее отклонение от экспериментальных данных среди моделей

TALYS 1.96 наблюдается у модели T-GHFB (Температурно-зависимые плотности уровней Гогни–Хартри–Фока–Боголюбова). Среди моделей кода EMPIRE 3.2 наибольшее расхождение с экспериментальными данными показала модель EMPIRE-1 (PCROSS=0, HMS=0).

Кроме того, при энергиях протонов до 20 МэВ значительных расхождений между результатами, полученными с использованием различных моделей одного и того же кода, не обнаружено. Вместе с тем отсутствие существенных различий в относительных отклонениях между вычислениями с использованием кодов TALYS 1.96 и EMPIRE 3.2 свидетельствует о хорошем согласии между ними в данном диапазоне энергий.

Автор благодарит И.А. Керобян за плодотворные обсуждения.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке МОНКС РА в рамках научного проекта № SCS 21T-1C095.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. A. Hermanne, F. Ta'rka'nyi, F. Ditro'i, et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 247, 180 (2006).
- 2. S.M. Kormali, E.A. Schweikert. Radioanal. Chem., 31, 413 (1976).
- 3. C.H. Johnson, J.K. Bair, C.M. Jones, S.K. Penny, D.W. Smith. Phys. Rev. C, 15, 196 (1977).
- M.U. Khandaker, K. Kim, K.S. Kim, M. Lee, Y.S. Lee, G. Kim, Y.S. Cho, Y.O. Lee. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 267, 23 (2009).
- 5. B.V. Zhuravlev, A.A. Lychagin, N.N. Titarenko. Phys. Atom. Nuclei, 69, 363 (2006).
- 6. E.K. Elmaghraby, S.A. Said, F.I. Asfour. Applied Radiation and Isotopes, 67 147 (2009).
- 7. V.G Batij, E.A. Skakun. Proceedings of the International Conference on Nuclear Spectroscopy and Nuclear Structures, Minsk, 248, (1991).
- 8. N. Miyazawa, M. Uesugi, A. Yokoyama. Radiochim. Acta., 109, 453 (2021).
- 9. V.I. Zherebchevsky, I.E. Alekseev, K.A. Gridnev, E.B. Krymov, T.V. Lazareva et al. Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics, **80**, 888 (2016).
- 10. G.H. Hovhannisyan, T.M. Bakhshiyan, G.V. Martirosyan, R.K. Dallakyan, A.R. Balabekyan. Eur. Phys. J. A, 59, 161 (2023).
- 11. A. Koning, S. Hilaire, S. Goriely. TALYS 1.9. A nuclear reaction program, December 21 (2017). http://www.talys.eu/
- 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
- 13. N.V. Kurenkov, V.P. Lunev, Yu.N. Shubin. Applied Radiation and Isotopes, 50, 541 (1999).

ՊՐՈՏՈՆ ՀԱՐՈՒՑՎԱԾ ՌԵԱԿՑԻԱՆԵՐԻ ԳՐԳՌՄԱՆ ՖՈՒՆԿՑԻԱՆԵՐԻ ՈՒՍՈՒՄՆԱՍԻՐՈՒԹՅՈՒՆԸ ԲՆԱԿԱՆ ԱՆԱԳԻ ՎՐԱ TALYS 1.96 ԵՎ EMPIRE 3.2 ԿՈԴԵՐԻ ՄԻՋՈՑՈՎ

Ա.Յու. ՊԵՏՐՈՍՅԱՆ

Ուսումնասիրվել են պրոտոններով հարուցված ռեակցիաների գրգոման ֆունկցիաները բնական անագի վրա ^{ռat}Sn(p,x)^{118m;120m;122;124}Sb,^{113;117m}Sn՝ օգտագործելով TALYS 1.96 և EMPIRE 3.2 ստատիստիկ միջուկային կոդերի տարբեր մոդելներ, համապատասխան ռեակցիաների շեմերից մինչև 70 ՄէՎ էներգիայի տիրույթում։ Համեմատություն է կատարվել TALYS 1.96 և EMPIRE 3.2 կոդերի տարբեր մոդելների միջոցով ստացված տեսական հաշվարկների և EXFOR տվյալների բազայում առկա փորձարարական տվյալների միջն։ Փորձարարական տվյալների համեմատությունը տեսական հաշվարկների արդյունքների հետ իրականացվել է ստատիստիկ վերլուծության միջոցով։ Միջին կշոված հարաբերական շեղումները օգտագործվել են փորձարարական և տեսական ընդլայնական կտրվածքների արժեքների և կոդերի հաշվարկների հուսալիության աստիձանի գնահատման համար։ Հետազոտությունը կարևոր է նաև նրանով, որ ստացված որոշ իզոտոպներ ունեն կիրառական նշանակություն, օրինակ՝ ¹²⁴Sb, ¹²²Sb և ^{117m}Sn:

STUDY OF EXCITATION FUNCTIONS OF PROTON-INDUCED REACTIONS ON NATURAL TIN USING TALYS 1.96 AND EMPIRE 3.2 CODES

A.Yu. PETROSYAN

The excitation functions of proton-induced reactions on natural tin, $natSn(p,x)^{118m;120m;122;124}Sb$ and $^{113;117m}Sn$, were investigated using statistical nuclear codes TALYS 1.96 and EMPIRE 3.2. Various models implemented in these codes were applied for the proton energy range from reaction thresholds up to 70 MeV. A comparison of theoretical calculations, utilizing different models of the TALYS 1.96 and EMPIRE 3.2 codes, with experimental data from the EXFOR database was performed. The experimental data were compared with theoretical results through statistical analysis. Weighted statistical parameters of relative deviation were used to assess the differences between experimental and theoretical cross-section values and to evaluate the reliability of the codes. The importance of this study is determined by the practical applications of the ¹²⁴Sb, ¹²²Sb, and ^{117m}Sn isotopes.

NONLINEAR DYNAMICS OF Q-GAUSSIAN LASER BEAM IN COLLISIONAL PLASMA: EFFECT OF LINEAR ABSORPTION

D. TRIPATHI¹, S. KAUR², A. VIJAY³, K. WALIA^{2*}

¹Guru Gobind Singh Indraprastha University, Delhi, India ²DAV University Jalandhar, India ³GLA University Mathura(U.P.), India

*e-mail: keshavwalia86@gmail.com

(Поступила в редакцию 10 февраля 2024 г.)

The present research investigates nonlinear dynamics of q-Gaussian laser beam in Collisional Plasma considering the influence of linear absorption. In Collisional plasma, redistribution of carriers occurs as a result of non-uniform heating thereby creating density gradients inside plasma leading to beam's self-focusing. The Paraxial ray approximation is used for obtaining the nonlinear differential equation for spot size of laser beam. The numerical solution of this differential equation is obtained by wellknown Runge-Kutta 4th order method to explore the behavior of beam waist with normalized propagation distance. Effect of change in laser-plasma parameters such as beam intensity, plasma density, beam radius, absorption coefficient and q-values on beam waist of laser beam is also analyzed.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Zhang, M., He, J.T., Chen, D.B., et al., Phys. Plasmas, 2007, vol. 14, p. 072701.
- 2. Lalousis, P., Moustaizis, S., Hora, H., et al., J. Fusion Energy, 2015, vol. 34, p. 62.
- 3. Hora, H., Korn, G., Giuffrida, L., et al., Laser Part. Beams, 2015, vol. 33, p. 607.
- 4. Hora, H., Zeitschrift fur Physik, 1969, vol. 226, p. 159.
- 5. Sauerbrey, R., Phys. Plasmas, 1996, vol. 3, p. 4712.
- 6. Bhatia, A., Walia K., and Singh, A., Optik, 2021, vol. 244, p. 167608.
- 7. Bhatia, A., Walia K., and Singh, A., Optik, 2021, vol. 245, p. 167747.
- 8. Walia, K., Optik, 2021, vol. 225, p. 165592.
- Wilks, S.C., Dawson, J.M., Mori, W.B., Katsouleas, T., and Jones, M.E., *Phys. Rev. Lett.*, 1989, vol. 62, p. 2600.
- 10. Utlaut, W.F. and Cohen, R., Science, 1971, vol. 174, p. 245.
- 11. Brueckner and K.A., Jorna, S., Rev. Mod. Phys., 1974, vol. 46, p. 325.
- Faure, J., Glinec, Y., Pukhov, A., Kiselev, S., Gordienko, S., Lefebvre, E., Rousseau, J.P., Burgy, F., and Malka, V., *Nature*, 2004, vol. 431, p. 541.
- 13. Young, P.E., Baldis, H.A., Drake, R.P., Campbell, E.M., and Estabrook, K.G., *Phys. Rev. Lett.*, 1988, vol. 61, p. 2336.
- 14. Corkum, P.B., Rolland, C., and Rao, T., Phys. Rev. Lett., 1986, vol. 57, p. 2268.
- 15. Sprangle, P., Esarey, E., and Krall, J., Phys. Plasmas, 1996, vol. 3, p. 2183.
- 16. Lemoff, B.E., Yin, G.Y., GordonIII, C.L., Barty, C.P.J., and Harris, S.E., *Phys. Rev. Lett.*, 1995, vol. 74, p. 1574.
- 17. Deutsch, C., Bret, A., Firpo, M.C., Gremillet, L., Lefebvre, E., and Lifschitz, A., *Laser Part. Beams*, 2008, vol. 26, p. 157.

- Liu, X., Umstadter, D., Esarey, E., and Ting, A., *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 1993, vol. 21, p. 90.
- 19. Kaw, P., Schmidt, G., and Wilcox, T., Phys. Fluids, 1973, vol. 16, p. 1522.
- 20. Walia, K., Tripathi, D., and Tyagi, Y., Commun. Theor. Phys, 2017, vol. 68, p. 245.
- 21. Walia, K., *Optik*, 2023, vol. 277, p. 170681.
- 22. Walia, K. and Singh, A., Optik, 2021, vol. 247, p. 167867.
- 23. Kakkar, V., Walia, K., and Tripathi, D., Optik, 2021, vol. 244, p. 167597.
- 24. Tyagi, Y., Tripathi, D., Walia, K., and Garg, D., Phys. Plasmas, 2018, vol. 25, p. 043118.
- 25. Walia, K., Tyagi, Y., Tripathi, D., et al., Optik, 2019, vol. 195, p. 163166.
- 26. Walia, K., Commun. Theor. Phys., 2023, vol. 75, p. 095501.
- 27. Walia, K., Optik, 2020, vol. 219, p. 165040.
- 28. Askaryan, G.A., Soviet Phys. JETP, 1962, vol. 15, p. 1088.
- 29. Milchberg, H.M., Durfee III, C.G., et al., Phys. Rev. Lett., 1995, vol. 75, p. 2494.
- 30. Tikhonchuk, V.T., Huller, S., and Mounaix, P., Phys. Plasmas, 1997, vol. 4, p. 4369.
- 31. Gauniyal, R., Chauhan, P., Rawat, P., et al., Laser Part. Beams, 2014, vol. 32, p. 557.
- 32. Rawat, P., Singh, R.K., Sharma, R.P., and Purohit, G., Eur. Phys. J. D, 2014, vol. 68, p. 1.
- 33. Erokhin, N., Zakharov, V.E., and Moiseev, S.S., Sov. Phys. JETP, 1969, vol. 29, p. 101.
- 34. Bobin, J.L., Phys. Rep., 1985, vol. 122, p. 173.
- Glandorf, L.N., Scheer, M., Samuels, D.A., Mulhisen, A.M., Grant, E.R., Yang, X., Bierbaum, V.M., and Leone, S.R., Phys. Rev. Lett., 2001, vol. 87, p. 193002.
- Tobey, R.I., Siemens, M.E., Cohen, O., Murnane, M.M., Kapteyn, H.C., and Nelson, K.A., Opt. Lett., 2007, vol. 87, p. 286.
- Ginzburg, V.N., Ginzburg, Lozhkarev, V.V., Mironov, S.Y., Potemkin, A.K., and Khazanov, E.A., *Quantum Electron*. 2010, vol. 40, p. 503.
- 38. Singh, A. and Walia, K., J. Fusion Energy., 2013, vol. 32, p. 422.
- 39. Singh, A. and Walia, K., J. Fusion Energy., 2013, vol. 32, p. 355.
- 40. Walia, K., Optik, 2016, vol. 127, p. 6618.
- 41. Walia, K., Kakkar, V., and Tripathi, D., Optik, 2020, vol. 204, p. 164150.
- 42. Walia, K., and Singh, T., Commun. Theor. Phys., 2023, vol. 75, p. 125503.
- 43. Walia, K., and Singh, A., J. Nonlinear Opt. Phys. Mater., 2013, vol. 22, p. 1350030.
- 44. Mahmoud, S.T. and Sharma, R.P., Phys. Plasmas 2001, vol. 8, p. 3419.
- 45. Mahmoud, S.T., Sharma, R.P., et al., Phys. Plasmas, 1999, vol. 6, p. 927.
- 46. Yu, W., Yu, M.Y., Xu, H., Tian, Y.W., Chen, J., and Wong, A.Y., *Laser Part. Beams*, 2007, vol. 25, p. 631.
- 47. Hora, H., Laser Interaction and Related Plasma Phenomena, vol.4B, Plenum: New York, 1977.
- Kane, E.L. and Hora, H., Laser Interaction and Related Plasma Phenomena, Plenum, New York, 1977.
- 49. Sodha, M.S. and Tripathi, V.K., J. Appl. Phys., 1977, vol. 48, p. 1078.
- 50. Sodha, M.S., Mittal, R.S., Kumar, S. and Tripathi, V.K., *Opto-electronics*, 1974, vol. 6, p. 167.
- 51. Akhmanov, S.A., Sukhorukov, A., and Khokhlov, R., *Sov.Phys.Uspekhi.*, 1968, vol. 10, p. 609.
- 52. Sodha, M.S., Ghatak, A.K., and Tripathi, V.K., *Progress in Optics*, North Holland; Amsterdam, 1976.
- 53. Sodha, M.S. and Tripathi, V.K., Phys. Rev. A, 1977, vol. 16, p. 2101.
- 54. Hora, H., J. Opt. Soc. Am., 1975, vol. 65, p. 882.
- 55. Sodha, M.S., Kaushik, S.C. and Kumar, A., Appl. Phys., 1975, vol. 7, p. 187.
- 56. Sodha, M.S. and Kaw, P.K., Harmonics in Plasmas, New York, 1969.

Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.26–32 (2025) УДК 535.343 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-26

РЕЗОНАНС ЭЛЕКТРОМАГНИТНО-ИНДУЦИРОВАННОЙ ПРОЗРАЧНОСТИ В СИГНАЛЕ СЕЛЕКТИВНОГО ОТРАЖЕНИЯ В ПАРАХ АТОМАРНОГО Cs

А.Д. САРГСЯН^{*}, Д.Е. БОСТАНДЖЯН, Д.Г. САРКИСЯН

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: sarmeno@mail.ru

(Поступила в редакцию 14 января 2025 г.)

Исследован процесс электромагнитно-индуцированной прозрачности (EIT) с использованием двух разных пробных излучений в атомарных парах Cs. В первом случае пробное излучение – пропускание через наноячейку с образованием EIT_T; во втором – селективное отражение (SR) лазерного излучения от границы атомарные пары–диэлектрик (диэлектрик – окно наноячейки) с образованием EIT_{SR}. Для формирования EIT-резонансов использовались излучения от двух непрерывных узкополосных лазеров с $\lambda = 852$ нм и наноячейка с толщиной столба паров атомов в интервале 150–1500 нм. Проводилось сравнение формирования EIT-резонансов в 1- и 2-м случаях. Пробные излучения, содержащие EIT_T и EIT_{SR}-резонансы, распространяются в противоположных направлениях. Отмечается, что в ряде случаев формирование EIT-резонанса эффективнее проводить, используя SR-излучение. Зарегистрировано расщепление EIT_{SR}-резонанса в продольном магнитном поле на семь эквидистантных компонент, что позволяет проводить дистанционный мониторинг магнитного поля.

1. Введение

В последнее время возобновился интерес к процессам когерентного пленения населённости (в англоязычной литературе CPT-coherent population trapping) и связанного с ним явления электромагнитно-индуцированной прозрачности (в англоязычной литературе EIT – electromagnetically induced transparency), отчасти, благодаря разработке атомных часов в масштабе чипа, таких, как микроконструированные атомные часы [1-3]. Для некоторых потенциальных приложений, использующих эти эффекты, важно сильно уменьшить размеры используемых ячеек, содержащих атомарные пары для формирования СРТ- или ЕІТ-резонанса, сохраняя при этом их хорошие параметры. В работе [4] для формирования EITрезонанса использовались пробное и связывающее излучения от двух непрерывных узкополосных лазеров с $\lambda = 780$ нм и наноячейка с толщиной столба паров атомов L в интервале $150 \le L \le 1500$ нм. В качестве пробного излучения использовалось излучение селективного отражения (в англоязычной литературе SR – selective reflection) от границы паров атомов Rb и диэлектрика – окна наноячейки с парами атомов Rb. Эффекту SR лазерного излучения от границы газ (пары атомов щелочных металлов) и диэлектрик (окно спектроскопической ячейки сантиметровой длины, содержащей атомарный газ) посвящено большое число исследований, которые изложены в работах [4–12]. Однако позже было продемонстрировано существенное преимущество формирования SR-излучения при использовании спектроскопической ячейки нанометровой толщины, поскольку спектр SR-излучения имеет спектральную ширину ~10 МГц, что более чем на порядок уже, чем при использовании спектроскопической ячейки сантиметровой длины [13, 14]. Это важно для практических применений [10–15]. В работе [4] для формирования EIT-резонанса проводилось сравнение двух возможных реализаций: в первом случае в качестве пробного излучения использовалось пропускание через наноячейку, и при наличии связывающего излучения формировалось EIT_т; во втором случае использовалось излучение SR от Rb наноячейки, и при наличии связывающего излучения формировалось EIT_{SR}. Было показано, что при толщинах столба паров атомов Rb L < 200 нм, параметры EIT_{SR} лучше. Поскольку, при одинаковой температуре плотность атомов Cs в несколько раз превосходит плотность атомов Rb, то целесообразно проводить вышеотмеченные исследования в парах атомов Cs.

В работах [16, 17] показано, что в Л-системе для формирования EITрезонанса (в случае слабого пробного v_P излучения) необходимо выполнение условия

$$\Omega_{\rm c}^{2/}(\gamma_{\rm D} \gamma_{21}) >> 1, \tag{1}$$

где $\Omega_{\rm C}$ – частота Раби сильного связывающего v_C излучения, $\gamma_{\rm D}$ – доплеровское уширение ~ 350 МГц, γ_{21} содержит уширение, обусловленное дефазировкой когерентности нижних уровней Λ -системы, столкновительное уширение атома со стенками наноячейки, и времяпролетное уширение, обусловленное малым временем пролета атома через лазерный пучок диаметром 0.1 см. В нашем случае $\gamma_{21} \sim 2$ МГц [17]. Частота Раби $\Omega_{\rm C}$ определяется из простого выражения

$$\Omega_{\rm c}/2\pi = \gamma_{\rm 6P} \left(I/8 \right)^{1/2},\tag{2}$$

где *I* – интенсивность связывающего лазера в единицах мВт/см² [18], γ_{6P} – радиационная ширина уровня 6Р_{3/2}, равная 5.2 МГц. В нашем случае *I* = 2 Вт/см², Ω_c = 82 МГц и выражение (1) выполняется. Большая величина Ω_c приводит к уширению ЕІТ-резонанса

$$\gamma_{\rm EIT} = \Omega_{\rm c}^{2} / \gamma_{\rm D} + \gamma_{21} \tag{3}$$

и равна ~21 МГц [3]. Формула (3) верна при использовании когерентно-связанных пробного и связывающего излучений [3]. В нашем случае это не выполняется, поэтому γ_{EIT} может быть немного больше.

Целью настоящей работы было формирование и изучение EIT-резонансов в сигнале SR в парах атомов Cs в наноячейке с варьируемой толщиной L = 150-1500 нм. Как показано ниже, полученные результаты могут иметь как научный интерес, так и прикладное значение.

2. Эксперимент и обсуждение результатов

Фрагмент схемы эксперимента приведен на рис.1а. Использовались излучения двух непрерывных узкополосных диодных лазеров с внешним резонатором и с длинами волн 852 нм. Пробное v_P и связывающее излучения v_C имели спектральную ширину ~1 МГц (лазер ECDL с внешним резонатором [19]). Частота v_P сканировалась по переходам $4 \rightarrow 3', 4', 5'$ (здесь и далее верхние уровни отмечены штрихами), а частота связывающего излучения v_C находилась в резонансе с переходом $3 \rightarrow 4'$. Часть (10%) излучения лазера v_C направлялась на систему для



Рис.1. (а) Фрагмент экспериментальной схемы формирования ЕІТ-резонансов в Cs-наноячейке с участием SR пробного излучения $v_{P(SR)}$ и проходящего через наноячейку с v_{PT} (T-transmission) с одновременным участием v_C излучения (для простоты показано только первое окно наноячейки). Угол между v_P и связующим v_C излучениями составляет несколько мрад. (b) Диаграмма энергетических уровней Cs, D₂ линии, которые формируют ЕІТ-резонанс. Частота v_P сканировалась по переходам $4 \rightarrow 3' 4' 5'$, а частота v_C находилась в резонансе с переходом $3 \rightarrow 4'$

осуществления стабилизации его частоты методом DAVLL [20]. Соответствующие энергетические уровни Cs D₂-линии, которые формируют Л-систему и участвуют в формировании EIT-резонанса, показаны на рис.1b.

Процесс SR происходит от границы паров Cs и сапфирового окна (Al₂O₃) наноячейки [4], что формирует пробное излучение v_{p(SR)}. Второе сапфировое окно наноячейки, которое находится очень близко к первому окну (не показано, чтобы не усложнять рисунок), имеет внутреннюю поверхность, почти параллельную внутренней поверхности первого окна, то есть наноячейка ведет себя как низкодобротный эталон Фабри–Перо [21]. Расстояние между внутренними поверхностями окон, то есть величина зазора L, может плавно изменяться в диапазоне 30– 2000 нм (для этого обеспечивается слабая клиновидность зазора). Методика определения толщины зазора наноячейки приведена в [22]. Наноячейка помещалась в двухсекционный нагреватель для независимого нагрева окон и бокового отростка-резервуара, заполненного металлическим Сs. Для прохождения лазерного излучения нагреватель имел два отверстия диаметром 10 мм. Пробное v_P и связывающее v_C излучения совмещались и направлялись перпендикулярно окну Сѕ наноячейки. При вертикальном перемещении нагревателя с наноячейкой внутри лазерное излучение могло проходить через различные толщины зазора наноячейки. Пробное и связывающее излучения имели линейные и одинаковые поляризации.

Поэтому для блокировки связывающего излучения между пробным и связывающим излучениями делался небольшой угол (мрад). Как видно из рис.1а пробное v_P и связующее v_C излучения также могут быть совмещенными, распространяясь через наноячейку и образуя EIT_T-резонанс (индекс обозначает пропускание – transmission.) Таким образом при различных толщинах зазора наноячейки проводилось сравнение EIT_{SR} и EIT_T резонансов. Оптические излучения регистрировались фотодиодом FD-24 и 4-канальным осциллографом TDS2014B.

На рис.2 показаны два процесса ЕІТ в парах Cs в Λ-системе; в первом случае в качестве пробного излучения используется пропускание через наноячейку с образованием EIT_T, во втором – излучение SR с образованием EIT_{SR}. Температура наноячейки – 110°С, мощности пробного и связывающего излучений 0.1 и 20 мВт, соответственно. На рис.2а – толщина столба паров 1200 нм, кривая 1 – спектр проходящего пробного излучения при наличии связывающего излучения, который содержит формируемый EIT_T-резонанс, кривая 2 – спектр SR при наличии связывающего излучения содержит формируемый EIT_{SR}-резонанс, кривая 3 – продифференцированный (differentiated) спектр кривой 2, который содержит EIT^D_{SR} (спектральная ширина 35 МГц). На рис.2b толщина столба паров 800 нм, кривая 1 – спектр проходящего пробного излучения с EIT_T-резонансом, кривая 2 – спектр SR с EIT_{SR}-резонансом, кривая 3 – продифференцированный спектр кривой 2, который содержит EIT^D_{SR}.

На рис.3 толщина столба паров 200 нм, кривая 1 – спектр SR при наличии связывающего излучения, который содержит формируемый EIT_{SR}-резонанс, кривая 2 – продифференцированный спектр кривой 1, который содержит EIT^D_{SR} (спектральная ширина 80 МГц).



На рис.4 приведена зависимость спектральной ширины EIT_{SR}-резонанса

Рис.2. Два процесса ЕІТ в парах атомов Cs: (а) толщина столба паров L=1200 нм, кривая 1 – спектр пропускания с ЕІТ_т-резонансом, кривая 2 – спектр селективного отражения с формируемым ЕІТ_{SR}-резонансом, кривая 3 – продифференцированный спектр кривой 2; (b) L=800 нм, кривая 1 – спектр пропускания, кривая 2 – спектр SR с ЕІТ_{SR}-резонансом, кривая 3 – продифференцированный спектр кривой 2.



Рис.3. Спектры SR и его производная DSR при толщине ячейки L = 200 нм. Кривая l – спектр SR с EIT_{SR}-резонансом, кривая 2 – продифференцированный спектр кривой l.

 $\gamma_{\rm EITSR}$ от толщины зазора *L* наноячейки; наблюдается зависимость $\gamma_{\rm EITSR} \sim 1/L$.Отметим, что при больших атомных плотностях целесообразней формировать EIT_{SR}-резонанс, поскольку SR-излучение формируется тонким столбом паров атомов $L \sim \lambda/2\pi$ [7] (где λ – длина волны излучения резонансного с атомным переходом), и поглощение излучений $v_{P(SR)}$ и v_{C} невелико, в то время как EIT_т-резонанс формируется по всей длине ячейки, что вызывает большее поглощение излучений v_{PT} и v_{C} .

Для формирования магнитного поля использовалась система из 3-х катушек Гельмгольца, внутрь которой помещалась наноячейка, содержащая пары атомов Cs. Катушки Гельмгольца позволяли обнулить лабораторное магнитное поле и создать магнитное поле в нужном направлении. На рис.5 к наноячейке приложено продольное магнитное поле, направленное вдоль распространения лазерного излучения. Магнитное поле B = 70 Гс. Регистрировалась производная спектра от SR. Для того, чтобы расщепление было хорошо видно, мощность связывающего лазера увеличивалась до 30 мВт. Толщина ячейки L = 1000 нм. В этом случае образуются семь эквидистантных EIT_{SR}-резонансов с шириной линии 25 МГц. Начальным и конечным уровнями являются основные уровни $F_g = 3$ и $F_g =$



Рис.4. Зависимость спектральной ширины EIT_{SR} -резонанса от толщины зазора L наноячейки. Пунктирная кривая— аппроксимация функцией ~1/L. Черные квадраты — экспериментальные результаты.



Рис.5. (а) Расщепление EIT_{SR}-резонанса в продольном магнитном поле B = 70 Гс на семь компонент с частотным расстоянием между соседними компонентами 65.1 МГц. Толщина ячейки L = 1000 нм. (b) Вставка показывает образование семи Λ -систем.

4, которые расщепляются на семь и девять зеемановских подуровней, соответственно. Поскольку частотный сдвиг зеемановских подуровней $F_g = 3$ и $F_g = 4$ составляет – 0.465 и + 0.465 МГц/(Гс), соответственно [17], и они смещены в противоположных направлениях, то частотное расстояние между двумя соседними EIT_{SR}-резонансами при магнитной индукции B = 70 Гс составляет 2 × 70 Гс × 0.465 МГц/Гс = 65.1 МГц. Отметим, что эквидистантное расположение частот EIT_{SR}-резонансов сохраняется вплоть до магнитных полей $B \ll B_0 = A_{\rm hfs}/\mu_{\rm B}$, где $A_{\rm hfs}$ – константа магнитного дипольного взаимодействия, а $\mu_{\rm B}$ — магнетон Бора [23–25], и для атома Cs B₀ ~1.6 кГс. Для теоретического определения частотных сдвигов нижних уровней $F_g = 3$, 4 при $B > B_0$ используются формулы Брейта–Раби [23]. Отметим, что EIT_{SR} можно использовать для дистанционного мониторинга величины магнитного поля.

3. Заключение

Для формирования EIT-резонанса использовались пробное и связывающее излучения от двух непрерывных узкополосных лазеров с $\lambda = 852$ нм, а также наноячейка с толщиной столба паров атомов в интервале 150-1500 нм. EITрезонанс исследован для двух случаев: в качестве пробного излучения использовалось излучение, проходящее через наноячейку, и вместе с связывающим излучением v_{C} , формировался EIT_T-резонанс; в качестве пробного излучения использовалось излучение vP(SR) селективного отражения лазерного излучения от наноячейки, и при наличии связывающего излучения v_C формировался EIT_{SR}резонанс. Пробные излучения, содержащие ЕІТ_т и ЕІТ_{sr}-резонансы, распространялись в противоположных направлениях. Исследовалась зависимость спектральной ширины EIT_{sr}- резонанса γ_{EITSR} при толщинах столба паров L: 1200, 800 и 200 нм; наблюдается зависимость _{УЕІТЅR} ~1/L. Зарегистрировано расщепление EIT_{SR}- резонанса в продольном магнитном поле на семь эквидистантных компонент. Поскольку пробное излучение, которое содержит EIT_{SR}, распространяется в противоположном направлении падающему излучению, EIT_{SR} можно использовать для дистанционного мониторинга магнитного поля. Заметим, что при использовании когерентно связанных пробного и связывающего лазерных излучений [1–3], спектральная ширина EIT-резонансов может быть значительно меньше приведенных выше величин.

Работа выполнена при финансовой поддержке Комитета по науке PA в рамках научных проектов N 22IRF-06 и N 1-6/23-I/IPR.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. M. Fleischhauer, A. Imamoglu, J.P. Marangos. Rev. Mod. Phys., 77, 633 (2005).
- 2. J. Kitching. Appl. Phys. Rev., 5, 031302 (2018).
- 3. R. Finkelstein, S. Bali, O. Firstenberg, I. Novikova. New J. Phys., 25, 035001 (2023).
- 4. A. Sargsyan, A. Gogyan, D. Sarkisyan. JQSRT, 329, 109197 (2024).
- 5. T.A. Vartanyan, D.L. Lin. Phys. Rev. A, 51, 1959 (1995).
- 6. T.A. Vartanyan, A. Weis. Phys. Rev. A, 63, 063813 (2001).
- 7. D. Bloch, M. Ducloy. Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics. Elsevier, 2005.
- 8. V.A. Sautenkov, H. Li, M.A. Gubin, Y.V. Rostovtsev, M.O. Scully. Laser Phys., 21, 153

(2011).

- 9. D.N. Khachatryan, G.G. Grigoryan. J. Contemp. Phys., 54,136 (2019).
- 10. A.A. Bobrov, S.A. Saakyan, V.A. Sautenkov, B.B. Zelener. JETP Lett., 114, 524 (2021).
- V.A. Sautenkov, S.A. Saakyan, A.A. Bobrov, E.V. Vilshanskaya, B.B. Zelener. Bull. Lebedev Phys. Inst., 50, S599 (2023).
- V. Sautenkov, S. Saakyan, A. Bobrov, L. Khalutornykh, B. Zelener. JQSRT, 328, 109153 (2024).
- A. Sargsyan, A. Papoyan, I.G. Hughes, C.S. Adams, D. Sarkisyan. Opt. Lett., 42, 1476 (2017).
- 14. A.D. Sargsyan, D.H. Sarkisyan. J. Contemp. Phys., 59, 233 (2024).
- W. Demtroder. Laser Spectroscopy: Basic Concepts and Instrumentation. Springer, Berlin, 2004.
- 16. J. Gea-Banacloche, Y.Q. Li, S.Z. Jin, M. Xiao. Phys. Rev. A, 51, 576 (1995).
- A. Sargsyan, Y. Pashayan-Leroy, C. Leroy, S. Cartaleva, D. Sarkisyan. J. Mod. Optics, 62, 769 (2015).
- A.J. Krmpot, M.M. Mijailovic, B.M. Panic, D.V. Lukic, A.G. Kovacevic, D.V. Pantelic, B.M. Jelenkovic. Opt. Express, 13, 1448 (2005).
- 19. V. Vassiliev, S. Zibrov, V. Velichansky. Rev. Sci. Instrum., 77, 013102 (2006).
- 20. V.V. Yashchuk, D. Budker, J.R. Davis. Rev. Sci. Instrum., 71, 341 (2000).
- 21. G. Dutier, S. Saltiel, D. Bloch, M. Ducloy. J. Opt. Soc. Am. B, 20, 793 (2003).
- 22. A. Sargsyan, A. Amiryan, S. Cartalev, D. Sarkisyan. JETP, 125, 43 (2017).
- D.A. Steck. Alkali D line data, available from: steck.us/alkalidata/ https://steck.us/alkalidata/cesiumnumbers.pdf.
- 24. B.A. Olsen, B. Patton, Y.Y. Jau, W. Happer. Phys. Rev. A, 84, 063410 (2011).
- M.A. Zentile, J. Keaveney, L. Weller, D.J. Whiting, C.S. Adams, I.G. Hughes. Computer Physics Commun., 189, 162 (2015).

RESONANCE OF ELECTROMAGNETICALLY INDUCED TRANSPARENCY IN THE SELECTIVE REFLECTION SIGNAL OF ATOMIC Cs VAPOR

A.D. SARGSYAN, D.E. BOSTANJYAN, D.H. SARKISYAN

The process of electromagnetically induced transparency (EIT) was investigated using two different probe radiations in Cs atomic vapors: In the first case probe radiation– transmission through a nanocell (NC) with the formation of EIT_T; in the second–selective reflection (SR) of laser radiation from the boundary of the atom-dielectric vapor (dielectric is nanocell window) with the formation of EIT_{SR}. To form EIT resonances, we used two continuous narrow-band lasers with $\lambda = 852$ nm and a nanocell with an atomic vapor column thickness in the range of 150–1500 nm. A comparison of the formation of EIT resonance in the 1-st and 2-nd cases was carried out. Probe radiation containing EIT_T and EIT_{SR}-resonances propagates in opposite directions. It is noted that in a few cases, the formation of EIT resonance is more effective using SR radiation. The splitting of the EIT_{SR}-resonance in the longitudinal magnetic field into seven equidistant components was recorded, which allows remote monitoring of the magnetic field.
Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.33–41 (2025) УДК 535;343.1 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-33

ДЕТАЛЬНЫЙ СПЕКТРОСКОПИЧЕСКИЙ И ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ КРИСТАЛЛА YB:LuAG ПРИ КРИОГЕННЫХ И КОМНАТНЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ

Г. ДЕМИРХАНЯН^{1,2}, В. PATRIZI^{3*}, G. TOCI³, П. МУЖИКЯН¹, M. VANNINI³, A. PIRRI⁴, М. МАРКАРЯН², Р. КОСТАНЯН^{1,5}

¹Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения ²Армянский государственный педагогический университет, Ереван, Армения ³Istituto Nazionale di Ottica, CNR-INO, Sesto Fiorentino (Fi), Italy ⁴Istituto di Fisica Applicata "Carrara", CNR-IFAC, Sesto Fiorentino (Fi), Italy ⁵Национальная Академия Наук Республики Армения, Ереван, Армения

*e-mail: barbara.patrizi@ino.cnr.it

(Поступила в редакцию 30 января 2025 г.)

На основе анализа низкотемпературных спектров поглощения и излучения кристалла $20\%Yb^{3+}:Lu_3Al_5O_{12}$ определены энергии штарковских уровней иона Yb^{3+} в додекаэдрических позициях. В рамках теории кристаллического поля (КП) точечных зарядов (точечная группа симметрии D_2) определены параметры КП и построены волновые функции штарковских состояний. Рассчитаны силы линий непрямых электрических дипольных и магнитных дипольных межштарковских переходов и определены параметры Джадда–Офельта. Показано, что тонкую структуру в низкотемпературных спектрах поглощения и излучения невозможно объяснить на основе стандартной структуры уровней Yb^{3+} , занимающих додекаэдрические узлы кристаллической решетки.

1. Введение

Кристалл Lu₃Al₅O₁₂ (LuAG) (пространственная группа O_h¹⁰ – Ia3d) с параметром решетки 11.906 Å является превосходной матрицей благодаря таким привлекательным характеристикам, как высокая теплопроводность и выдающиеся физические и химические свойства [1]. В этой кубической кристаллической структуре с высокой степенью симметрии ионы Lu³⁺ занимают додекаэдрические позиции, ионы Al³⁺ — октаэдрические и тетраэдрические позиции, а ионы O²⁻ формируют трехмерную решетку, стабилизирующую структуру. Кристалл LuAG, активированный ионами Yb³⁺, Nd³⁺ и Ce³⁺, широко используется в качестве лазерного материала. Его оптические и механические свойства схожи со свойствами кристалла YAG. Благодаря сопоставимому атомному весу и ионному радиусу активаторных ионов (Yb^{3+} , Nd^{3+} и Tm^{3+}) и ионов Lu³⁺ в решетке, активирование оказывает минимальное влияние на колебательные моды решетки LuAG. Эта особенность позволяет создавать лазерные кристаллы Yb:LuAG с высокой концентрацией активаторного иона без

значительного влияния на теплопроводность материала. В результате Yb:LuAG сохраняет высокую теплопроводность и отличную механическую стабильность даже при высоких концентрациях активаторных ионов, что критически важно для эффективного отвода тепла в мощных лазерах. Более того, Yb:LuAG обладает благоприятными спектроскопическими свойствами, включая широкую полосу поглощения и высокую квантовую эффективность, что делает его особенно подходящим для твердотельных лазеров с диодной накачкой. Эти характеристики делают Yb:LuAG универсальным материалом для широкого круга применений, включая медицинские лазеры, промышленную обработку и научные исследования. Лазерное излучение на длинах 1030 и 1050 нм было получено на кристаллах Yb:LuAG с различными концентрациями иттербия [2-5]. Проведены детальные экспериментальные исследования спектроскопических свойств Yb³⁺:LuAG и <<смешанного>> кристалла Yb:(LuY)AG при различных концентрациях примесных ионов (см., например, [5-8]). В частности, измерены спектры поглощения и излучения при 12 К и комнатной температуре [6, 7], а также определена квантовая эффективность люминесценции в кристалле Yb:LuAG [6].

В настоящей работе мы представляем спектроскопическую характеристику коммерческого образца высокоактивированного кристалла 20%Yb:LuAG (Crytur Ltd.) с высоким спектральным разрешением. В частности, представлены спектры излучения и поглощения образца при 10 и 297 К, соответственно. На основе анализа тонкоструктурных спектров низкотемпературного поглощения и излучения были определены энергетическая схема штарковских уровней, параметры кристаллического поля (КП) и волновые функции штарковских состояний, а также был проведен анализ Джадда–Офельта и определены параметры интенсивности.

2. Оптические спектры кристалла Yb:LuAG

Оптические измерения проводились при двух температурах 10 и 297 К с использованием оптического криостата с окнами из кварцевого стекла, охлаждаемого с помощью замкнутого холодильного цикла (CTI-CRYOGENICS). Измерения поглощения выполнялись с использованием самодельной спектрофотометрической системы, обеспечивающей высокое спектральное разрешение и точность калибровки длины волны, основанной на спектрометре Jobin Yvon Spex 320 с линейной ССД-матрицей. Общее спектральное разрешение системы и точность калибровки длины волны в ближнем ИК диапазоне составляли около 0.1 нм (FWHM, полная ширина на половине максимума). Спектры излучения регистрировались с использованием того же спектрометра и детектора, описанных выше; возбуждение осуществлялось с помощью диодного лазера, соединенного с оптоволокном, излучающего на длине волны 930 нм, выход которого фокусировался на образце через окна криостата. Чтобы минимизировать эффекты реабсорбции, образец возбуждался очень близко к его краю, а излучение собиралось под углом 90°. Полное описание измерительного оборудования и протокола измерений можно найти в [10].

С теоретической точки зрения, как известно, основная электронная конфигурация (4f¹³) иона Yb³⁺ состоит из восьмикратно вырожденного основного

мультиплета ${}^{2}F_{7/2}$ и шестикратно вырожденного возбужденного мультиплета ${}^{2}F_{5/2}$, которые в КП расщепляются соответственно на четыре и шесть крамерсовских дублетов. При низких температурах, когда заселен только нижащий штарковский уровень основного мультиплета, спектр поглощения должен содержать три ноль-фононные (НФ) линии, обусловленные переходами с нижнего штарковского уровня мультиплета на три штарковских уровня возбужденного мультиплета. Аналогично, низкотемпературный спектр излучения должен содержать четыре НФ линии, возникающие при переходах с нижайщего штарковского уровня возбужденного мультиплета ${}^{2}F_{5/2}$ на штарковские уровни основного мультиплета.

2.1. Спектры поглощения и поперечное сечение поглощения при 10 K и комнатной температуре

Спектры поглощения кристалла 20%Yb:LuAG при температурах 10 и 297 К представлены на рис.1а и рис.1b, соответственно, а на рис.2 – поперечное сечение поглощения, рассчитанное на основе спектров поглощения, показанных на рис.1. Пик поглощения соответствует НФ линии на длине волны 967.44 нм при 10 К и 968.15 нм при комнатной температуре, что демонстрирует красное смещение на 0.7 нм, в то же время FWHM двух полос составляет 0.3 и 1.8 нм, соответственно (рис.1.b).

Видно, что интенсивности линий в диапазонах длин волн 915.5–919.7 и 923.3–941.0 нм уменьшаются с увеличением температуры. Это указывает на то, что эти линии являются НФ линиями или, по крайней мере, содержат доминирующие НФ компоненты. В то же время интенсивности слабых линий в диапазоне 919.3–923.3 и 943.6–962.1 нм увеличиваются с температурой, что свидетельствует об отсутствии НФ линий в этих областях. Что касается линии на 967.4 нм, то она представляет собой смесь основной линии (связанной с переходом между нижними штарковскими уровнями основного и возбужденного мультиплетов) и фононных сателлитов. Это подтверждается резким уменьшением интенсивности этой линии с ростом температуры и характерным для фононных сателлитов температурным сдвигом ($\Delta \lambda \cong 0.4$ нм) (рис.1).

Разложение спектра низкотемпературного поглощения на лоренцевы



Рис.1. Спектры поглощения (а) и увеличенная основная 0-0 линия (b) при 10 (кривая 2) и 297 К (кривая 1) кристалла 20% Yb:LuAG.



Рис.2. Поперечное сечение поглощения кристалла 20%Yb:LuAG при 10 (кривая 2) и 297 К (кривая 1).

компоненты выявляет, вместо трех теоретически предсказанных, большое количество НФ линий: 916.5, 919.0, 924.1, 927.8, 929.1, 930.6, 933.6, 935.4, 939.1 и 940.1 нм. Наличие такого значительного количества дополнительных НФ линий может быть вызвано: искажением КП, действующего на Yb³⁺, вызванным анти-сайтовыми дефектами [9]; наличием части ионов Yb³⁺ в октаэдрических позициях (а-узлы) [10]; многоионными взаимодействиями, эффективность которых зависит от концентрации примесных ионов и степени их неоднородного распределения в кристаллической решетке. Для достоверного определения причин появления этих дополнительных линий необходимы комплексные исследования с использованием рентгеноструктурного анализа, ЭПР и ЯМР данных.

Ниже обсуждаются спектроскопические свойства кристалла 20%Yb:LuAG, обусловленные ионами Yb³⁺ в додекаэдрических позициях в предположении, что линии на 967.4, 939.4 и 916.5 нм соответствуют линиям поглощения ионов Yb³⁺ в с-позициях.

2.2. Спектры излучения при 10 К и комнатной температуре

Спектры излучения кристалла 20%Yb:LuAG при 10 и 297 К представлены на рис.3. Наиболее интенсивный переход в спектрах излучения, соответствующий стимулированному излучению между возбужденным состоянием ${}^{2}F_{5/2}$ и основным состоянием ${}^{2}F_{7/2}$ ионов Yb³⁺, локализуется на длине волны 1028.9 нм при 10 К и 1029.5 нм при 297 К, с FWHM, равными 1.0 и 6.3 нм, соответственно.

Анализ расщепления полос низкотемпературного спектра на лоренцевы компоненты выявляет пики линий излучения на длинах волн 967.4, 974.8, 976.6, 998.9, 1002.6, 1004.9, 1005.9, 1009.7, 1011.2, 1012.4, 1018.6, 1021.8, 1026.2, 1028.9 и 1044.6 нм. Наличие большого числа линий в спектре излучения, вероятно, связано с теми же причинами, что и в спектре поглощения. Например, группа близко расположенных линий с разницей в 2–3 нм может быть связана с искажением КП. Слабые линии, такие как 998.9 и 1012.4 нм, могут быть связаны с ионами Yb³⁺ в октаэдрических позициях.

Разложение спектра излучения при 297 К на лоренцевы компоненты выявляет следующие пиковые значения отдельных линий: 967.9, 977.6, 999.1,



Рис.3. Спектры излучения кристалла 20% Yb:LuAG при (a) 10 и (b) 297 К.

1006, 1012.7, 1029.7 и 1045 нм. Можно заметить, что с увеличением температуры некоторые линии сливаются с ближайшей более интенсивной линией, образуя широкую линию со сдвигом пикового значения на величину $\Delta \lambda = 0.1-1$ нм (рис.3b). В частности, для перехода на 1029.7 нм наблюдается сдвиг на 0.65 нм при двух рассматриваемых температурах. Более того, в спектре, полученном при 10 К, в полосе с центром при 1028.9 нм присутствует расщепленная компонента с пиком 1026.5 нм. В то же время характерное значение температурного сдвига НФ линий составляет примерно 0.01 нм, поэтому рассматриваемые линии являются смесью НФ линий и фононных сателлитов.

Таким образом, мы предполагаем, что линии на 967.4, 1005.9, 1028.9 и 1044.6 нм соответствуют переходам с нижнего штарковского уровня мультиплета ${}^{2}F_{5/2}$ на штарковские уровни основного мультиплета иона Yb³⁺ в додекаэдрической позиции.

3. Волновые функции и энергии штарковских уровней

В приближении точечных зарядов гамильтониан КП с точечной группой симметрии *D*₂, выраженный через операторы Стивенса, имеет вид [11]:

$$\hat{H}_{CF} = \alpha_J \sum_{q=0}^{1} B_{2,2q} \hat{O}_{2,2q} + \beta_J \sum_{q=0}^{2} B_{4,2q} \hat{O}_{4,2q} + \gamma_J \sum_{q=0}^{3} B_{6,2q} \hat{O}_{6,2q}, \qquad (1)$$

где α_J , β_J и γ_J – коэффициенты Стивенса, $B_{k,q}$ – параметры КП, $\hat{O}_{k,2q}$ (k = 2, 4, 6) – эквивалентные операторы ранга k (для Yb³⁺, 4f⁴³ электронная конфигурация: $\alpha_{7/2} = \frac{2}{63}$, $\beta_{7/2} = -\frac{2}{15\times77}$, $\gamma_{7/2} = \frac{4}{13\times27\times77}$, $\alpha_{5/2} = \frac{2}{35}$, $\beta_{5/2} = -\frac{2}{9\times35}$, $\gamma_{5/2} = 0$).

Энергии штарковских уровней определялись внутримультиплетной диагонализацией гамильтониана (1) в приближении слабого КП с

Табл.1. Наблюдаемые и вычисленные значения энергий штарковских уровней Yb³⁺ в с-узле

Energy, cm ⁻¹	\mathcal{E}_1	<i>E</i> ₂	<i>E</i> ₃	\mathcal{E}_4	\mathcal{E}_5	\mathcal{E}_6	\mathcal{E}_7
Observed	0	395.7	617.9	764.0	10337.0	10648.5	10911.1
Calculated	0	396.3	617.0	763.7	10336.6	10648.8	10911.2
Difference	0	-0.6	+0.9	+0.3	+0.4	-0.3	-0.1

использованием матричных элементов операторов Стивенса, табулированных в [11]. Для параметров КП, определенных из условия наилучшего согласия вычисленных и экспериментальных значений энергий штарковских уровней (табл.1), получены следующие значения: $B_{20} = -115$, $B_{22} = 373$, $B_{40} = -52$, $B_{42} = -922$, $B_{44} = -840$, $B_{60} = -92.4$, $B_{62} = 538$, $B_{64} = -99$, $B_{66} = 300$ (в см⁻¹).

Волновые функции штарковских состояний в *LSJM*/ представлении (*L*, *S* и *J* – соответственно орбитальный, спиновый и полный угловые моменты, *M*/ – проекция полного момента *J*), являющиеся собственными функциями гамильтониана (1), приведены ниже (нумерация начинается с нижнего штарковского уровня основного мельтиплета)

$$\begin{split} |v_{1}\rangle &= \pm 0.6140 \left| \frac{7}{2} \mp \frac{7}{2} \right\rangle \mp 0.7533 \left| \frac{7}{2} \mp \frac{3}{2} \right\rangle \mp 0.0945 \left| \frac{7}{2} \pm \frac{1}{2} \right\rangle \pm 0.2159 \left| \frac{7}{2} \pm \frac{5}{2} \right\rangle, \\ |v_{2}\rangle &= \pm 0.4787 \left| \frac{7}{2} \mp \frac{7}{2} \right\rangle \pm 0.1627 \left| \frac{7}{2} \mp \frac{3}{2} \right\rangle \mp 0.1335 \left| \frac{7}{2} \pm \frac{1}{2} \right\rangle \mp 0.8524 \left| \frac{7}{2} \pm \frac{5}{2} \right\rangle, \\ |v_{3}\rangle &= \mp 0.1521 \left| \frac{7}{2} \mp \frac{7}{2} \right\rangle \mp 0.3176 \left| \frac{7}{2} \mp \frac{3}{2} \right\rangle \pm 0.8913 \left| \frac{7}{2} \pm \frac{1}{2} \right\rangle \mp 0.2856 \left| \frac{7}{2} \pm \frac{5}{2} \right\rangle, \\ |v_{4}\rangle &= \mp 0.6088 \left| \frac{7}{2} \mp \frac{7}{2} \right\rangle \mp 0.5525 \left| \frac{7}{2} \mp \frac{3}{2} \right\rangle \mp 0.4229 \left| \frac{7}{2} \pm \frac{1}{2} \right\rangle \mp 0.3811 \left| \frac{7}{2} \pm \frac{5}{2} \right\rangle, \\ |v_{5}\rangle &= 0.48436 \left| \frac{5}{2} \mp \frac{3}{2} \right\rangle + 0.4826 \left| \frac{5}{2} \pm \frac{1}{2} \right\rangle - 0.7298 \left| \frac{5}{2} \pm \frac{5}{2} \right\rangle, \\ |v_{6}\rangle &= -0.8521 \left| \frac{5}{2} \mp \frac{3}{2} \right\rangle + 0.7517 \left| \frac{5}{2} \pm \frac{1}{2} \right\rangle + 0.6289 \left| \frac{5}{2} \pm \frac{5}{2} \right\rangle. \end{split}$$

4. Силы линий межштарковских переходов

Вычисление сил линий неполяризованных косвенных электродипольных (КЭД) $S_{if}^{(IED)}$ и магнито-дипольных (МД) $S_{if}^{(MD)}$ переходов между штарковскими уровнями мультиплетов ${}^{2}F_{7/2}$ и ${}^{2}F_{5/2}$ проведены по формулам, получим в [12, 13] в рамках приближенной теории Джадда–Офельта [14, 15]:

$$S_{if}^{(IED)} = \sum_{t=2,4,6} \Omega_t A_{if}^{(IED)} |\langle J_f || U_t || J_i \rangle|^2,$$
(2)

$$S_{if}^{(MD)} = \frac{24}{7} \left(\frac{\mu}{e}\right)^2 A_{if}^{(MD)},$$
(3)

$$A_{if}^{(IED,MD)} = \sum_{m} \left| \sum_{M_{i},M_{f}} (-1)^{J_{f} - M_{f}} b_{J_{f},M_{f}}^{*} b_{J_{i},M_{i}} \begin{pmatrix} J_{f} & t & J_{i} \\ -M_{f} & -m & M_{i} \end{pmatrix} \right|^{2}.$$
 (4)

Здесь Ω_t (t = 2, 4, 6) – параметры Джадда–Офельта, $\langle J_f || U_t || J_i \rangle$ – приведенный матричный элемент межмультиплетного перехода $J_i \to J_f$ (для Yb³⁺: $\left| \left(\frac{5}{2} || U_2 || \frac{7}{2} \right) \right|^2 = \frac{6}{49}, \left| \left(\frac{5}{2} || U_4 || \frac{7}{2} \right) \right|^2 = \frac{20}{49}$ и $\left| \left(\frac{5}{2} || U_6 || \frac{7}{2} \right) \right|^2 = \frac{6}{7}$), μ – магнетон Бора, e – заряд электрона, (\vdots) – 3j символ, $b_{J_{i,M_i}}$ и $b_{J_{f,M_f}}$ – численные коэффициенты в выражениях волновых функций начального (i) и конечного (f) штарковских состояний (рис.4): $|i\rangle = \sum_{M_i} b_{J_{i,M_i}} |J_i, M_i\rangle$ и $|f\rangle = \sum_{M_f} b_{J_{f,M_f}} |J_f, M_f\rangle$; t = 2, 4, 6 для КЭД и t = 1 для МД переходов.

Интегральное поперечное сечение поглощения вычислено по формуле

$$\sigma_{\rm cal}^{\rm (abs)}(\bar{\lambda}_{if}) = \frac{8\pi^3 e^2 \lambda_{if}}{3chn^2} \Big(\chi_{IED} S_{ij}^{(IED)} + \chi_{MD} S_{ij}^{(MD)} \Big), \tag{5}$$

где $\bar{\lambda}_{if}$ – пиковое значение длины волны перехода $i \to f$, c – скорость света, n – коэффициент преломления (для Yb:LuAG в области длин волн 960–1050 нм $n \cong$ 1.82 [16]), h – постоянная Планка; $\chi_{IED} = n(n^2 + 2)^2/9$ и $\chi_{MD} = n^3$ – поправки локального КП сил линий КЭД и МД переходов. В результате вычислений интегральных поперечных сечений переходов на длинах волн 967.4, 939.4, 916.5 нм получены следующие выражения:

$$\begin{split} \sigma_{\rm cal}^{\rm (abs)}(967.4) &= (0.0184 + 0.2422\Omega_2 + 0.0479\Omega_4 + 0.0063\Omega_6) \times 10^{-27}, \\ \sigma_{\rm cal}^{\rm (abs)}(939.1) &= (0.0779 + 0.1146\Omega_2 + 0.0131\Omega_4 + 0.6140\Omega_6) \times 10^{-27}, \\ \sigma_{\rm cal}^{\rm (abs)}(916.5) &= (0.0006 + 0.0969\Omega_2 + 0.1908\Omega_4 + 0.4217\Omega_6) \times 10^{-27}. \end{split}$$

Экспериментальные значения интегральных поперечных сечений поглощения $\sigma_{\exp}^{(abs)}(\bar{\lambda}_{if}) = \int \sigma_{abs}(\lambda) d\lambda$ определены с использованием низкотемпературного спектра (рис.2): $\sigma_{int}^{exp}(967.4) = 0.304 \times 10^{-27}$, $\sigma_{int}^{exp}(939.1) = 4.242 \times 10^{-27}$, $\sigma_{int}^{exp}(916.5) = 3.090 \times 10^{-27}$ (в см³). Из условия наилучшего согласия вычисленных (б) и эхпериментальных значений интегральных поперечных сечений поглощения определены параметры Джадда-Офельта: $\Omega_2 = 0.77 \times 10^{-20}$, $\Omega_4 = 1.19 \times 10^{-20}$, $\Omega_6 = 6.61 \times 10^{-20}$ (в см²). Найденные волновые функции штарковских уровней и величины параметров Джадда-Офельта позволят вычислить спектроскопические характеристики, обусловленные межштарковскими переходами.

5. Заключение

Анализ температурных зависимостей спектров поглощения и излучения выявил НФ линии, число которых в низкотемпературном спектре поглощения оказалось больше теоретически предсказанного. Одной из возможных причин появления дополнительных НФ линий может быть наличие ионов Yb³⁺ в *a*-узлах решетки. Дополнительные низко интенсивные НФ линии также могут быть вызваны локальными искажениями КП, действующего на ион Yb³⁺, а также многоионными взаимодействиями, эффективность которых зависит от концентрации примесных ионов и степени их неоднородного распределения в кристаллической решетке (например, образованием парных Yb³⁺–Yb³⁺ центров). Однако интенсивности дополнительных НФ линий в области 915–945 нм спектра поглощения достаточно высоки (рис.1 и 2) и их наличие не может быть объяснено двумя последними упомянутыми причинами. В то же время, согласно данным, представленным в [6], доля ионов Yb³⁺, занимающих октаэдрические позиции в решетке кристалла 50%Yb³⁺:LuAG, составляет всего 0.25%. Очевидно, что при 20%-ом содержании ионов иттербия эта доля будет еще меньше, что затрудняет интерпретацию дополнительных интенсивных линий в спектрах поглощения и излучения наличием ионов Yb³⁺ в октаэдрических позициях.

Отметим также, что некоторые линии (например, линиии 967.4 и 1028.9 нм) являются смесью НФ линий и фононных сателлитов, о чем свидетельствуют

величины их температурного сдвига при комнатной температуре. Поэтому при интерпретации рассматриваемых спектров поглощения и излучения следует учесть также электрон–фононное взаимодействие оптических электронов иона Yb³⁺ с колебаниями решетки.

Таким образом, наличие дополнительных интенсивных НФ линий в спектре поглощения кристалла 20%Yb:LuAG представляет собой проблему и требует дополнительного спектроскопического исследования, основанного на данных рентгеноструктурного анализа, ЭПР и ЯМР. В любом случае, наиболее интенсивные НФ линии, наблюдаемые в спектрах поглощения и излучения, следует отнести к ионам Yb³⁺ в додекаэдрической координации.

Данная работа была выполнена при поддержке совместной программы между Министерством образования, науки, культуры и спорта Республики Армения и Национальным исследовательским советом Италии (проект «Сравнительное исследование структурных и спектрально-кинетических свойств лазерно-активных керамических и монокристаллических гранатов YAG, LuAG и YSAG, легированных ионами Yb³⁺ и Tm³⁺», грант 23SC-CNR-1C007).

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Y. Kuwanoa, K. Sudab, N. Ishizawab, T. Yamadac. J. Crystal Growth, 260, 159 (2004).
- 2. T. Kasamatsu, H. Sekita, Y. Kuwano. Appl. Opt., 38, 5149 (1999).
- 3. J. Dong, K. Ueda, A.A. Kaminskii. Opt. Lett., 32, 3266 (2007).
- S. Slimi, V. Jambunathan, M. Pan, Y. Wang, W. Chen, P. Loiko, R. M. Solé, M. Aguiló, F. Díaz, M. Smrz, T. Mocek, X. Mateos. Appl. Phys. B, 129, 571 (2023).
- S. Slimi, P. Loiko, M. Pan, P. Lehoux, V. Jambunathan, M. Smrz, T. Mocek, Y.Wang, W. Chen, V. Petrov, R. M. Solé, M.Aguiló, F. Díaz, P. Camy, X. Mateos. Crystals, 13, 15881 (2023).
- 6. A. Brenier, Y. Guyot, H. Canibano, G. Boulon, A. Ródenas, D. Jaque, A. Eganyan, A. G. Petrosyan. J. Opt. Soc. Am. B, 23, 676, (2006).
- J. Koerner, Ch. Vorholt, H. Liebetrau, M. Kahle, D. Kloepfel, R. Seifert, J. Hein, M.C. Kaluza. J. Opt. Soc. Am. B, 29, 2493 (2012).
- 8. A.Toncelli, M. Alshourbagy, M. Tonelli, J. Appl. Phys., 104, 1049161 (2008).
- 9. X.-Q. Feng. J. Inorganic Materials, 25, 785 (2010).
- G. Demirkhanyan, B. Patrizi, R. Kostanyan, J. Li, A. Pirri, Y. Feng, T. Xie, L. Wu, M. Vannini, M. Becucci, D. Zargaryan, G. Toci. J. Solid State Chemistry, 316, 123577 (2022).
- A. Abragam, B. Bleaney. Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions. Oxford, Oxford University Press, 1970.
- 12. G.G. Demirkhanyan. Laser Physics, 16, 1054 (2006).
- G.G. Demirkhanyan, R.B. Kostanyan. Proc. SPIE, Int. Conf. Laser Physics 2010, 7998, 42 (2011).
- 14. B.R. Judd. Phys. Rev., 127, 750 (1962).
- 15. S. Ofelt. J. Chem. Phys., 37, 511 (1962).
- 16. J. Hrabovský, M. Kučera, L. Paloušová, L. Bi, M. Veis. Opt. Mater. Express 11, 1218

Yb:LuAG ԲՅՈՒՐԵՂԻ ՍՊԵԿՏՐԱԴԻՏԱԿԱՆ և ՏԵՍԱԿԱՆ ՄԱՆՐԱԿՐԿԻՏ ՎԵՐԼՈՒԾՈՒԹՅՈՒՆ ԿՐԻՈԳԵՆԱՅԻՆ ԵՎ ՍԵՆՅԱԿԱՅԻՆ ՋԵՐՄԱՍՏԻՃԱՆՆԵՐՈՒՄ

ዓ. ԴԵՄԻՐԽԱՆՅԱՆ, Բ. ՊԱՏՐԻՉԻ, ዓ. ՏՈՉԻ, Պ. ՄՈՒԺԻԿՅԱՆ, Մ. ՎԱՆԻՆԻ, Ա. ՊԻՐԻ, Մ. ՄԱՐԿԱՐՅԱՆ, Ռ. ԿՈՍՏԱՆՅԱՆ

20%Yb³⁺:Lu₃Al₅O₁₂ բյուրեղի կլանման և առաքման ցածր ջերմաստիձանային սպեկտրների վերլուծության հիման վրա որոշվել են դոդեկահեդրալ դիրքերը տեղալած Yb³⁺ իոնի շտարկյան մակարդակների էներգիաները։ Կետային լիցքերի բյուրեղային դաշտի (ԲԴ) տեսության շրջանակներում (*D*₂ կետային խումբ) որոշվել են ԲԴ պարամետրերը և կառուցվել են շտարկյան վիձակների ալիքային ֆունկցիաները։ Հաշվարկվել են անուղղակի էլեկտրադիպոլային և մագնիսադիպոլային միջշտարկյան անցումների գծերի ուժերը և որոշվել են Ջադդ–Օֆելտի պարամետրերը։ Յույց է տրված, որ ցածր ջերմաստիձանային կլանման և առաքման սպեկտրներում առկա նուրբ կառուցվածքը հնարավոր չէ բացատրել դոդեկահեդրալ համաչափություն ունեցող ԲԴ-ի հանգույցները տեղակալած Yb³⁺-ի մակարդակների ստանդարտ կառուցվածքի հիման վրա։

DETAILED SPECTROSCOPIC AND THEORETICAL ANALYSIS OF Yb:LuAG CRYSTAL AT CRYOGENIC AND ROOM TEMPERATURES

G. DEMIRKHANYAN, B. PATRIZI, G. TOCI, P. MUZHIKYAN, M. VANNINI, A. PIRRI, M. MARGARYAN, R. KOSTANYAN

By the analysis of the low-temperature absorption and emission spectra of the crystal $20\%Yb^{3+}$:Lu₃Al₅O₁₂, the energies of the Stark levels of Yb³⁺ ion in dodecahedral positions are determined. Within the framework of the crystal field (CF) theory of point charges (D_2 point symmetry group), the CF parameters are determined, and the wave functions of the Stark states are constructed. The line strengths of indirect electric dipole and magnetic dipole inter-Stark transitions are calculated and the Judd–Ofelt parameters are determined. Low temperature absorption and emission spectra show a complex fine structure that cannot be explained on the basis of the standard level structure of Yb³⁺ occupying sites with dodecahedral crystal field symmetry.

Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.42–50 (2025) УДК 539.1 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-42

СПИН-ЗАВИСИМОЕ МНОГОКАНАЛЬНОЕ ТУННЕЛИРОВАНИЕ ЭЛЕКТРОНА В НАНОТРУБКЕ С ПРИМЕСЬЮ В ПРОДОЛЬНОМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

Д.А. БАДАЛЯН, А.Ж. МУРАДЯН*

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: muradyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 22 января 2025 г.)

Исследовано многоканальное квантовое туннелирование электрона через потенциальный барьер тонкой примеси, введенной в нанотрубку, в присутствии продольного магнитного поля произвольной интенсивности. Подробно изучены и проиллюстрированы туннельные и поляризационные характеристики системы в зависимости от энергии электрона, радиуса нанотрубки и индукции магнитного поля. Указано, что в ряде областей энергии система может работать как идеальный поляризатор электронного потока.

1. Введение

Современные достижения в области микротехнологий позволили реализовать ряд субмикронных и наномасштабных систем. Квантовые проволоки, изготовленные в полупроводниковых гетероструктурах, являются одной из таких систем. Перенос электронов в них в значительной степени следует кванто-механическим закономерностям [1–4], демонстрируя интересные физические эффекты, такие как эффект Ааронова–Бома [5], эффект слабой локализации и квантование проводимости [6, 7]. Приложенное же вдоль оси нанотрубки магнитное поле усиливает геометрическое ограничение [8, 9] и влияет на все физические характеристики системы [10], в частности, на зависимость проводимости от поля и на шаг квантования проводимости [11].

Основная характеристика нанотрубки – проводимость – в волноводном баллистическом режиме распространения может быть выражена через соответствующие коэффициенты квантового туннелирования [12, 13], что и является предметом данного исследования при наличии примеси и продольного магнитного поля [14–18]. Основное внимание будет уделено поляризационным закономерностям, сопровождающим это распространение.

В работе выведены формулы стационарных состояний электрона в нанотрубке с примесью в присутствии магнитного поля с произвольной индукцией, дисперсионное уравнение для поляризационных состояний электрона, аналитические выражения для коэффициента прохождения (отражения) примеси в условиях многоканального рассеяния, степени поляризации туннельного и отраженного токов. Показано, что в определенной последовательности участков энергетического спектра туннельный ток падающих неполяризованных электронов в канале с наименьшей энергией поступательного движения всегда становится полностью поляризованным [19–21].

2. Теоретическая модель

Рассмотрим транспорт электрона в нанотрубке с радиусом a, разделенной на две части легированной диэлектрической примесью. Двигаясь с энергией E, электрон налетает на примесь слева, а однородное магнитное поле $\mathbf{B} = (0,0,B)$ направлено вдоль оси нанотрубки. Энергия взаимодействия спина электрона с магнитным полем **B** описывается членом,

$$U(\mathbf{r}) = -(\mathbf{\mu}_s \cdot \mathbf{B}) = \mathbf{\mu}_0 \, \sigma_z \, B \,, \tag{1}$$

где μ_0 – магнетон Бора, σ_z – матрица Паули. Потенциал примеси также предполагается аксиально симметричным: $U(\mathbf{r}) = U(\rho, z)$. Тогда одноэлектронная модель рассматриваемой системы будет описываться гамильтонианом

$$\hat{H}^{\pm} = \frac{1}{2m^*} \left(\hat{\mathbf{p}} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 + U(\rho, z) \pm \mu_0 H ,$$

где m^* и $\hat{\mathbf{p}}$ – эффективная масса и оператор импульса электрона, соответственно, знак «+» относится к направлению спина электрона по оси z, знак «-» – против оси z. В отличие от работы [22], мы не будем предполагать, что магнитное поле слабое и, соответственно, не ограничимся линейным членом поля в энергии взаимодействия (1). Тогда, учитывая divA = 0, получаем

$$\frac{1}{2m^*} \left(\hat{\mathbf{p}} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \Delta + \frac{eB}{2m^*c} \hat{L}_z + \frac{e^2 B^2}{8m^*c^2} \rho^2,$$

где \hat{L}_z – оператор проекции орбитального момента электрона:

$$\hat{L}_z = \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial \varphi}.$$

В отличие от случая атома, в случае нанотрубки, член B^2 так же (если не более) важен, как и член B. Относительный вклад последних двух членов в проблему зависит от размера (ограничения) поперечного сечения нанотрубки. Отметим также, что принятая модель одной частицы дает очень хорошее описание и понимание наблюдаемых явлений [23].

Независимое от времени уравнение Шредингера для «±» проекций спина электрона разбивается на отдельные уравнения, которые в используемых цилиндрических координатах имеют вид

$$\left(\frac{1}{\rho}\frac{\partial}{\partial\rho}\left(\rho\frac{\partial}{\partial\rho}\right) + \frac{1}{\rho^2}\frac{\partial^2}{\partial\phi^2} + \frac{\partial^2}{\partialz^2} + \chi^2 + i\xi\frac{\partial}{\partial\phi} - \frac{1}{4}\xi^2\rho^2 - V(\rho,z)\mp\xi\right)\psi^{\pm}(\rho,z,\phi) = 0, \quad (2)$$

где $V(\rho, z) = (2m^* / \hbar^2) U(\rho, z), \quad \chi^2 = (2m^* / \hbar^2) E, \quad \xi = \mu_0 (2m^* / \hbar^2) B.$ Верхний знак в скобках перед ξ относится к верхнему индексу волновой функции Ψ , нижний знак – к нижнему индексу. Стенка нанотрубки предполагается жесткой,

$$\Psi^{\pm}(\rho, z, \varphi) = 0,$$
если $\rho \ge a,$
(3)

что понижает вероятность непосредственного сталкивания электрона со стенками нанотрубки и тем самым способствует когерентному квантовомеханическому описанию системы [24].

Поскольку \hat{L}_z коммутирует с гамильтонианом системы, а граничное условие (3) не зависит от полярного угла φ , то проекция орбитального момента электрона является сохраняющейся величиной с собственными значениями $L_z = \hbar m$, $m = 0, \pm 1, \pm 2, \cdots$ и соответствующими собственными функциями $\psi(\varphi) = (2\pi)^{-1/2} \exp(im\varphi)$. Тогда решение (2) можем записать в виде

$$\Psi_m^{\pm}(\rho,\phi,z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} F_m(\rho,z) \exp(im\phi)$$

где $F_m(\rho, z)$ – искомая функция. Подставив это выражение в (2), для $F_m(\rho, z)$ получим

$$\left(\frac{1}{\rho}\frac{\partial}{\partial\rho}\left(\rho\frac{\partial}{\partial\rho}\right) - \frac{m^2}{\rho^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \chi^2 - \xi m - \frac{1}{4}\xi^2\rho^2 - V(\rho,z) \mp \xi\right) F_m^{\pm}(\rho,z) = 0, \quad (4)$$

Для решения этого уравнения обратимся к методу разложения по некоторому базису ортонормированных функций, выбирая в качестве такового решения уравнения

$$\left(\frac{1}{\rho}\frac{d}{d\rho}\left(\rho\frac{d}{d\rho}\right) - \frac{m^2}{\rho^2} - \xi m - \frac{1}{4}\xi^2 \rho^2 + \chi_{nm}^2\right) R_{nm}\left(\rho\right) = 0, \qquad (5)$$

подобного к рассматриваемому уравнению (4), со следующим из (3) граничным условием $R_{nm}(a) = 0$ и условием ортонормировки $a^{-2} \int_{0}^{a} R_{n'm}(\rho) R_{nm}(\rho) \rho d\rho$ = $\delta_{n'n}$. Тогда

$$F_m^{\pm}(\rho,z) = \sum_{n=1}^{\infty} \Phi_{nm}^{\pm}(z) R_{nm}(\rho).$$
(6)

Введем безразмерную переменную $x = \xi \rho^2$ и преобразуем уравнение (5) к виду

$$xR_{nm}''(x) + R_{nm}'(x) + \left(-\frac{x}{4} + \lambda_{nm} - \frac{m^2}{4x}\right)R_{nm}(x) = 0, \qquad (7)$$

$$\lambda_{nm} = \frac{\chi_{nm}^2}{2\xi} - \frac{m}{2}.$$
(8)

Учитывая асимптотики уравнения (7) при $x \to 0$ и $x \to \infty$ [25], имеем решение

$$R_{nm}(x) = c_{nm}e^{-\frac{x}{2}}x^{\frac{|m|}{2}}\Phi\left(-\left(\lambda_{nm} - \frac{|m|+1}{2}\right), |m|+1, x\right),$$
(9)

где $\Phi(\alpha, \gamma, x)$ – вырожденная гипергеометрическая функция Куммера, c_{nm} – постоянная, определяемая из условия нормировки

$$a^{-2} \int_{0}^{a} R_{nm}^{2}(\rho) \rho d\rho = 1.$$
 (10)

Заметим, что состояния (9) асимметричны (согласно обозначению (8)) относительно знака m. Это является признаком хорошо известной в классической физике закономерности, что в заданном магнитном поле электрон вращается либо по часовой стрелке, либо против часовой стрелки, но не в обоих направлениях.

После подстановки (6) в (4) и выделения поведения электрона в направлении z, уравнение Шредингера для $\Phi_{nn}^{\pm}(z)$ становится набором связанных уравнений

$$\frac{d^2 \Phi_{nm}^{\pm}(z)}{dz^2} + k_{nm}^{\pm 2} \Phi_{nm}^{\pm}(z) - \sum_{n'=1}^{\infty} V_{nn',m}(z) \Phi_{nm}^{\pm}(z) = 0, \qquad (13)$$

где $k_{nm}^{\pm} = \sqrt{\chi^2 - \chi_{nm}^2 \mp \xi}$ – волновое число спин-поляризованного электрона в канале с номером *n*, а коэффициент связи $V_{nn',m}^{\pm}(z)$ между каналами *n* и *n'* определяется выражением

$$V_{nn',m}(z) = \frac{1}{a^2} \int_0^a V(\rho, z) R_{n,m}(\rho) R_{n',m}(\rho) \rho d\rho , \qquad (14)$$

которое одинаково для обеих поляризаций электрона.

3. Поперечные моды

Прежде чем рассмотреть основной вопрос данной работы – закономерности поляризации туннелированных и отраженных состояний электрона, рассмотрим структуру и собственные состояния поперечных мод в нанотрубке. Они задаются уравнением (5) с наложенным граничным условием жесткой стенки $R_{nm}(a) = 0$. Поскольку параметры примеси в них не входят, то наличие примеси не сказывается на характере поперечного движения электрона, а определяет искючительно степень населенности той или иной поперечней моды и, конечно, поляризационные закономерности при наличии магнитного поля.

Из выражения (9) непосредственно следует, что энергетический спектр поперечного движения электрона (значения параметра λ_{nm} для каждого значения квантового числа *m*) определяется из трансцендентного уравнения

$$\Phi\left(-\left(\lambda_{nm} - \frac{|m|+1}{2}\right), |m|+1, \xi a^2\right) = 0.$$
(15)

Численные расчеты показывают, что в диапазоне радиусов от одного до пятидесяти нанометров, представляющих основной интерес в физике нанотрубок, энергетический спектр поперечного движения согласно (15) слабо зависит от индукции магнитного поля, по крайней мере, до полей порядка одного Тл. Зависимости же от радиуса a и магнитного квантового числа m остаются сильными. На рис.1 в качестве примера показана зависимость нижних энергетических уровней от радиуса a.

Уширения уровней должны быть достаточно малыми, чтобы можно было



Рис.1. Зависимость безразмерного параметра энергии поперечного движения χ_{n0} от радиуса нанотрубки a (первый нормирован на обратную величину длины нормировки $a_0 = 10$ нм, второй – на саму a_0) для низколежащих каналов n = 1-3 (кривые l-3). B = 100 Гс.

наблюдать эту структуру энергетических уровней. Для этого, помимо малых размеров, которые максимизируют масштаб энергии, обычно требуются и низкие температуры (порядка 1 К).

Если радиус нанотрубки достаточно мал (менее примерно 10 нм), то зависимость как энергетического спектра, так и распределения волновой функции от магнитного поля (до нескольких Тл) практически отсутствует. Квантование Ландау в этих условиях гораздо слабее размерного квантования. В относительно широких нанотрубках увеличение продольного магнитного поля, как и ожидалось, сопровождается концентрированием волновой функции вокруг оси нанотрубки.

4. Амплитуды рассеяния и спиновая поляризация

Система уравнений (13) в общем случае потенциала $U(\rho, z)$ не может быть решена аналитически. Ограничимся случаем тонкой примеси, когда толщина меньше длины волны де Бройля падающего на примесь электрона. Тогда может быть применимо приближение [26]

$$U(\rho,z)=f(\rho)\delta(z),$$

где $\delta(z)$ – дельта функция Дирака и $f(\rho)$ – некоторая функция. В этом случае система (13) упрощается и записывается в виде

$$\frac{d^2\Phi_n^{\pm}(z,m)}{dz^2} + k_n^{\pm 2}(m)\Phi_n^{\pm}(z,m) - \delta(z)\sum_{n'=1}^{\infty} A_{nn'}(m)\Phi_{n'}^{\pm}(z,m) = 0, \qquad (16)$$

где связывающие каналы коэффициенты

$$A_{nn'}(m) = \frac{2m^*}{\hbar^2 a^2} \int_0^a f(\rho) R_{nm}(\rho) R_{n'm}(\rho) \rho d\rho$$
(17)

постоянны и не зависят от поляризации электрона. Как было ранее отмечено в

[22], если потенциал туннелирующей примеси однороден по сечению проволоки, то интеграл в (17) тождественно равен нулю для всех $n' \neq n$, т.е. для создания в нанотрубке новых каналов, отличных от падающего канала, необходима поперечная неоднородность потенциала примеси.

Как и в случае слабых магнитных полей [26], в сильных полях распределение коэффициента $A_{nn'}$ также ведет себя интуитивно ожидаемым образом только при относительно широких $f(\rho)$, а именно, оно монотонно убывает по мере удалении номера канала n' от входного номера n. Однако при росте сконцентрированности $f(\rho)$, помимо общего роста значений $A_{nn'}$, пик их распределения монотонно перемещается к все более удаленным номерам n'. В пределе точечного потенциала зависимость от n' стремится к насыщению.

Аналитическое решение уравнения (9) имеет вид

$$\Phi_n^{\pm}(z,m) = \begin{cases} \delta_{n1} \exp(ik_1^{\pm}(m)z) + r_n^{\pm}(m)\exp(-ik_n^{\pm}(m)z), \ z < 0\\ t_n^{\pm}(m)\exp(ik_n^{\pm}(m)z), \ z > 0 \end{cases},$$
(18)

где предполагается, что электрон падает на дефект через первый (n=1), с наибольшей продольной энергией, канал.

В случае $k_{nm}^{\pm} \ge 0$ решение (18) представляет собой свободно распространяющиеся волны, а в противном случае – локализованные состояния вблизи примеси. Вероятность заселения локализованных мод мала [22, 26], и мы ограничимся учетом только распространяющихся мод. Тогда становится возможным с помощью формулы Крамера и граничных условий получить аналитические выражения для амплитуд прохождения и отражения t_n^{\pm} и r_n^{\pm} соответственно:

$$t_{nn'}^{\pm}(m) = \frac{D_n^{\pm}(m)}{D^{\pm}(m)}, \quad r_{nn'}^{\pm} = -\delta_{n1} + t_{nn'}^{\pm}$$
(19)

где $D^{\pm}(m)$ – определитель системы уравнений, а в $D_n^{\pm}(m)$ *n*-й столбец матрицы системы заменен столбцом свободных членов.

Вероятности прохождения и отражения от барьера определяются как

$$T_{nn'}^{\pm}(m) = \frac{v_{n'}^{\pm}(m)}{v_1^{\pm}} \left| t_{1n'}^{\pm}(m) \right|^2, \quad R_{nn'}^{\pm}(m) = \frac{v_{n'}^{\pm}(m)}{v_1^{\pm}} \left| t_{1n'}^{\pm}(m) \right|^2, \tag{20}$$

где $v_{n'}^{\pm}(m)$ – скорость электрона в исходящей моде n'. Сохранение потока вероятности гласит

$$\sum_{n'=1}^{\infty} T_{nn'}^{\pm}(m) + \sum_{n'=1}^{\infty} R_{nn'}^{\pm}(m) = 1.$$
(21)

Законы распространения спиновых состояний в нанотрубке различны, причиной чего является различие дисперсионных соотношений для спиновых компонент электрона, как это показано на рис.2. Сплошные линии соответствуют случаю, когда спин электрона направлен вдоль, а штриховые линии – против направления магнитного поля. Поэтому, при самых общих условиях выходные



Рис.2. Зависимость безразмерного параметра энергии $\chi = \sqrt{\chi_n^2 \pm \xi + k_n^2}$ от продольного волнового вектора k_n (оба нормированы на величину, обратную длине нормировки $a_0 = 10$ нм) для низколежащих каналов n = 1 - 4 (кривые 1-4) при поляризации электрона вдоль (сплошные кривые) и против (пунктирные кривые) направления магнитного поля. Индукция магнитного поля B = 2 Тл, радиус квантовой проволоки a = 30 нм.

состояния падающего неполяризованного электрона становятся поляризованными как справа, так и слева от нанотрубки.

Если энергии электрона соответствует низший диапазон на рис.2 вплоть до значения $\chi = \sqrt{\chi^2_{n=1,m} - \xi}$, то электрон не может распространяться в нанотрубке. В смежном сверху диапазоне энергий с $\sqrt{\chi^2_{n=1,m}} - \xi < \chi < \sqrt{\chi^2_{n=1,m}} + \xi$ в нанотрубке присутствует только продольно поляризованное состояние и поэтому туннелированный электрон на выходе из трубки будет полностью поляризован. В этом диапазоне система действует как идеальный поляризационный фильтр. В следующем интервале $\sqrt{\chi^2_{n=1,m} + \xi} < \chi < \sqrt{\chi^2_{n=2,m} - \xi}$ канал n = 1 открыт для обеих поляризаций и вопрос о поляризации выходных электронов зависит от вида регистрации. Если обе поляризации на выходе из нанотрубки регистрировать совместно, то поляризация будет частичной (или эллиптической). Однако если, используя разницу скоростей продольного распространения поляризационных состояний электрона, на выходе из нанотрубки выполнить их пространственное и угловое разделение, то регистрация разделенных частей даст чистые поляризации, хотя и с разными потоками вероятностей. В интервалах более высоких энергий картина аналогична и содержит все большее число выходных каналов как чистых, так и частичных поляризаций.

5. Заключение

В данной работе изучается многоканальное квантовое рассеяние электрона на примеси в нанотрубке с учетом взаимодействия спина электрона с внешним продольным магнитным полем. Коэффициенты связи между каналами не зависят от направления спина электрона. Тонкая примесь с неоднородным распределением потенциала туннелирования определяет вероятности заселения мод распространения, образующихся внутри нанотрубки. Заселенности в среднем увеличиваются с ростом концентрации потенциала вокруг оси нанотрубки. Выявлены образование мод и их туннелирование в зависимости от энергии электрона, магнитного поля и радиуса нанотрубки. Уточнено, как в каждом диапазоне значений параметров рассматриваемой системы соотносятся между собой квантование Ландау и размерное квантование. Показано, что соответствующим выбором мод, одного или нескольких, можно добиться любой степени поляризованности туннельного тока электрона. Следует иметь в виду, что при подготовке технологии использования предлагаемого механизма получения полностью поляризованных электронов необходимо будет ввести в рассмотрение, как минимум, конечное значение потенциала нанотрубки и стандартную физику входа и выхода в нее электронов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Комитета по высшему образования и науке Республики Аремения в рамках Лаборатории исследования и моделирования квантовых явлений ЕГУ.

ЛИТЕРАТУРА

- S. Datta. Electronic Transport in Mesoscopic Systems. Cambridge: Cambridge University Press, 1997.
- D. Ferry, S.M. Goodnick. Transport in Nanostructures. Cambridge: Cambridge University Press, 2010.
- 3. P. Harrison, A. Valavanis. Quantum wells, Wires and Dots: Theoretical and Computational Physics of Semiconductor Nanostructures, John Wiley & Sons, 2016.
- 4. H. Montagu, I. Farrer, D. Ritchie, S. Kumar. Appl. Phys. Express, 18, 015002 (2025).
- 5. В.А. Гейлер, В.А. Маргулис, А.В. Шорохов. ЖЭТФ, 115, 1450 (1999).
- 6. A.V. Chaplik, L.I. Magarill, D.A. Romanov. Physica B, 249, 377 (1998).
- 7. Н.Т. Баграев, А.Д. Буравлев, Л.Е. Клячкин, А.М. Маляренко, В. Гельхофф, В.К. Иванов, И.А. Шелых. ФТП, 36, 462 (2002).
- 8. J.K. Jain, S.A. Kivelson. Phys. Rev. Lett., 60, 1542 (1988).
- 9. M.Ya. Azbel. Phys. Rev. B, 43, 2435R (1991).
- 10. C.W.J. Beenakker, H. van Houten. Solid State Phys., 44, 1 (1991).
- B.J. van Wees, L.P. Kouwenhoven, H. van Houten, C.W.J. Beenakker, J.E. Mooij, C.T. Foxon, J.J. Harris. Phys. Rev. B, 38, 3625 (1988).
- 12. M. Buttiker. Phys. Rev. B, 41, 7906 (1990).
- 13. H.A. Fertig, B.I. Halperin. Phys. Rev. B, 36, 7969 (1987).
- 14. C.S. Chu, R.S. Sorbello. Phys. Rev. B, 40 5941 (1989).
- 15. A. Kumar, P.F. Bagwell. Phys. Rev. B, 44, 1747 (1991).
- 16. **М.И.** Любин. Письма в ЖЭТФ, **57**, 346 (1993).
- 17. A.K. Geim, T.J. Foster, A. Nogaret, N. Mori, P.J. McDonnell, N. La Scala , Jr., P.C. Main, L. Eaves. Phys. Rev. B, 50, 8074R (1994).
- 18. В.А. Гейлер, В.А. Маргулис. ЖЭТФ, 111, 2215 (1997).
- 19. V.A. Margulis, A.V. Shorokhov, M.P. Trushin. Phys. Lett. A, 276, 180 (2000).
- 20. X.Z. Duan, G.X. Wang. Applied Mechanics and Materials, 380-384, 4837 (2013).

- 21. И.А. Кузнецова, О.В. Савенко, Д.Н. Романов. ФТП, 55, 789 (2021).
- 22. А.Ж. Мурадян, Д.А. Бадалян. Изв. ВУЗов, Физика, 67, 3 (2024).
- 23. K. Kern, D. Heitmann, R.R. Gerhardts, P. Grambow, Y.H. Zhang, K. Ploog. Phys. Rev. B, 44, 1139 (1991).
- 24. A.N. Afanasiev, P.S. Alekseev, A.A. Greshnov, M.A. Semina. Phys. Rev. B, 104, 195415 (2021).
- 25. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Квантовая Механика: Нерелятивистская теория, Москва, Физматгиз, 1963.
- D.A. Badalyan, A.Zh. Muradyan. J. Cont. Phys. (Armenian Academy of Sciences), 58, 31 (2023).

ԱՐԱՏՈՎ ՆԱՆՈԽՈՂՈՎԱԿՈՒՄ ԷԼԵԿՏՐՈՆԻ՝ ՍՊԻՆԻՑ ԿԱԽՎԱԾ ԲԱԶՄՈՒՂԻ ԹՈՒՆԵԼԱՑՈՒՄ ԵՐԿԱՑՆԱԿԱՆ ՄԱԳՆԻՍԱԿԱՆ ԴԱՇՏՈՒՄ

Դ.Հ. ԲԱԴԱԼՅԱՆ, Ա.Ժ. ՄՈՒՐԱԴՅԱՆ

Ուսումնասիրվել է էլեկտրոնի բազմուղի քվանտային թունելացումը նանոխողովակի բարակ արատի պոտենցիալ արգելքի միջով կամայական ինտենսիվության երկայնական մագնիսական դաշտի առկայության դեպքում։ Համակարգի թունելացման և բնեռացման բնութագրերը մանրամասն ուսումնասիրված և պատկերված են՝ կախված էլեկտրոնի էներգիայից, նանոխողովակի շառավղից և մագնիսական դաշտի ինդուկցիայից։ Նշվում է, որ էլեկտռոնի էներգիայի մի շարք տիրույթներում համակարգը կարող է գործել որպես էլեկտրոնների հոսքի իդեալական բնեռացուցիչ։

SPIN-DEPENDENT MULTICHANNEL TUNNELING OF AN ELECTRON IN A NANOTUBE WITH AN IMPURITY IN A LONGITUDINAL MAGNETIC FIELD

D.A. BADALYAN, A.Zh. MURADYAN

Multichannel quantum tunneling of an electron through a potential barrier of a thin impurity introduced into a nanotube in the presence of a longitudinal magnetic field of arbitrary intensity is investigated. Tunneling and polarization characteristics of the system are studied in detail and illustrated as a function of the electron energy, nanotube radius, and magnetic field induction. It is indicated that in a number of electron energy ranges the system can operate as an ideal polarizer of the electron flow. Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.51–61 (2025) УДК 538.9 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-51

КОГЕРЕНТНОЕ УПРАВЛЕНИЕ КВАНТОВЫМИ СОСТОЯНИЯМИ МЕЛКОЙ ПРИМЕСИ В МОНОСЛОЕ ГРАФЕНА С ПОМОЩЬЮ ФАЗОМОДУЛИРОВАННЫХ БИХРОМАТИЧЕСКИХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ: ВЛИЯНИЕ ПРОЦЕССОВ РЕЛАКСАЦИИ

А.А. АВЕТИСЯН¹, А.П. ДЖОТЯН^{1*}, Г.П. ДЖОТЯН², А.Л. ВАРТАНЯН¹, А.Л. АСАТРЯН¹

¹Ереванский государственный университет, Ереван, Армения ²HUN-REN Wigner Research Centre for Physics, Budapest, Hungary

*e-mail: adjotyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 20 февраля 2025 г.)

С использованием вариационного метода рассчитаны дипольные матричные элементы для оптических переходов $1S - 2P^+$ и $2S - 2P^+$ мелкой донорной примеси в монослое графена с открытой энергетической щелью в перпендикулярном магнитном поле. Далее анализируется перенос населенности между двумя метастабильными состояниями 1S и 2S с помощью бихроматического фазомодулированного (частотно-чирпированного) лазерного импульса с учетом релаксационных процессов в системе. Показано, что такой перенос населенности может полностью осуществляться без значительного заселения возбужденного состояния, если длительность бихроматического импульса намного меньше времен релаксации системы. Спонтанный распад возбужденного состояния и дефазировка квантовых состояний приводят к неполному переносу населенности между метастабильными состояниями.

1. Введение

Когерентное управление квантовыми состояниями находит важное применение во многих областях науки и техники. Среди них – атомная интерферометрия [1, 2], квантовая химия [3], квантовая обработка данных [4, 5], квантовая оптика [6], генерация высоких гармоник, повышение эффективности нелинейных процессов в резонансных газах [7–12] и другие области. В последние годы широко исследуются различные схемы когерентного переноса населенности и когерентного создания суперпозиционных состояний [13–25]. Хотя методы когерентного управления разрабатываются в основном для атомных и молекулярных систем, эти методы становятся актуальными и в области графеновых систем [26– 30]. В нашей предыдущей работе [30] мы рассмотрели перенос заселенности и создание когерентности между двумя метастабильными 1*S* и 2*S* состояниями мелкой примеси в однослойном графене (ОСГ) в перпендикулярном магнитном поле с использованием одиночного, модулированного по фазе (частотно-чирпированного (FC)) лазерного импульса, предполагая, что длительность импульса намного короче времени релаксации системы.

В настоящей работе анализируется возможность использования двух частотно-чипированных лазерных импульсов – бихроматического FC импульса, для когерентного управления состояниями мелкой примеси в графеновой системе. Бихроматический FC импульс состоит из двух лазерных импульсов с одинаковой временной огибающей и частотным чирпом, действующими на два разных разрешенных дипольных перехода между двумя метастабильными состояниями мелкой примеси и общим возбужденным состоянием $2P^+$. Целью анализа, представленного в данной работе, является рассмотрение условий полного когерентного перехода заселенности рассматриваемой квантовой системы между ее метастабильными состояниями (без существенного возбуждения системы) с учетом спонтанного распада возбужденного состояния $2P^+$ и дефазирующей релаксации в системе. В качестве двух метастабильных состояний, как и в [30], рассмотрены 1S и 2S состояния мелкой донорной примеси в ОСГ с открытой энергетической щелью в перпендикулярном магнитном поле. Энергии двух метастабильных состояний и возбужденного состояния $2P^+$ рассчитаны в [30] с использованием вариационного подхода в модели предложенного «смягченного» кулоновского потенциала [31]. Чтобы иметь полный набор параметров для оценки времен релаксации, мы исследуем дипольные переходы между нижними 1S и 2S состояниями и возбужденным $2P^+$ состоянием мелкой донорной примеси в ОСГ в перпендикулярном магнитном поле.

2. Теория и математический формализм

2.1. Определение дипольных матричных элементов примесных межуровневых переходов

В этом подразделе теоретически исследуются дипольные матричные элементы для переходов $1S \rightarrow 2P^+$ и $2S \rightarrow 2P^+$ между примесными уровнями в ОСГ с открытой щелью в перпендикулярном магнитном поле. Предполагается, что электромагнитная волна распространяется в направлении Z и вектор напряженности электрического поля E(t) импульса с круговой поляризацией лежит в плоскости графена. Для двух направлений \mathbf{e}_x и \mathbf{e}_y вектора поляризации **е** имеем:

$$(\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y)\mathbf{r} = x + iy = \rho e^{i\phi}, \ (\mathbf{e}_x - i\mathbf{e}_y)\mathbf{r} = x - iy = \rho e^{-i\phi}.$$
 (1)

В дипольном приближении дипольный матричный элемент перехода из начального состояния *l* в конечное состояние *u* определяется выражением:

$$e(\mathbf{er})_{ul} = e\langle \Psi_u | \mathbf{er} | \Psi_l \rangle = d_{ul}, \qquad (2)$$

где ψ_u и ψ_l – нормированные волновые функции начального и конечного состояний, e – заряд электрона. Для определения энергетического спектра и нормированных волновых функций мелкого донора в щелевом ОСГ использовался вариационный метод. В качестве пробных волновых функций для основного и возбужденного состояний примесного электрона в поле «смягченного» кулоновского потенциала были выбраны решения двумерного квантового гармонического осциллятора [30, 31]. Уравнение для определения энергетического спектра одновалентной мелкой примеси в монослое графена в перпендикулярном

магнитном поле **B** с вектором-потенциалом **A** ($A_r = 0$, $A_{\phi} = B\rho/2$) в цилиндрических координатах имеет вид:

$$\left[\frac{U^2}{4} + (\mathbf{v}_F \hat{p})^2 + \mathbf{v}_F^2 \frac{m^2 \,\omega^2 \rho^2}{4}\right] \phi - i \,\mathrm{m} \mathbf{v}_F^2 \,\hbar \,\omega \frac{\partial \phi}{\partial \varphi} = \left(E + \frac{e^2}{\chi(\rho + b)}\right)^2 \phi, \qquad (3)$$

где масса электрона $m = U/2v_F^2$ определяется величиной щели U между зоной проводимости и валентной зоной, $v_F \approx 10^6 \ m/cek$ – скорость Ферми; $\omega = eB/mc$ – циклотронная частота, m – магнитное квантовое число. Диэлектрическая проницаемость системы графен-подложка $\chi = (\chi_1 + \chi_2)/2$ определяется диэлектрическими проницаемостями χ_1 и χ_2 окружающих сред. Используется выражение для «смягченного» кулоновского потенциала $V(\rho) = e^2/\chi(\rho + b)$ с параметром «толщины» b с учетом конечного внеплоскостного расширения волновой функции примесного электрона [30, 31]. Нулевая точка для энергии выбрана в середине щели. Роль постоянной тонкой структуры в ОСГ играет эффективный параметр тонкой структуры $\alpha = e^2/\chi\hbar v_F \approx 2.2/\chi$, связанный со скоростью Ферми.

Для основного состояния примесного электрона вариационная функция имеет вид:

$$\phi_{1S} = N_1 \exp(-\lambda_1 \rho^2), \qquad (4)$$

где нормировочная константа $N_1 = 1/\sqrt{2\pi A_1}$, $A_1 = \int_0^\infty e^{-2\lambda_1 \rho^2} \rho \, d\rho = 1/4\lambda_1$ и λ_1 – вариационный параметр для состояния 1*S*. Для состояния 2*S* выбираем пробную функцию с двумя вариационными параметрами λ_3 и δ :

$$\phi_{2S} = N_3 (1 - \delta \rho^2) \exp(-\lambda_3 \rho^2) , \qquad (5)$$

где нормировочная константа $N_3 = \sqrt{1/\pi A_3}$, $A_3 = \int_0^\infty e^{-2\lambda_3 \rho^2} (1 - \delta \rho^2) \rho^3 d\rho$. Для состо-

яния 2Р⁺ выберем пробную функцию

$$\phi_{2P+} = N_2 \exp(-\lambda_2 \rho^2) \rho \exp(i\varphi) , \qquad (6)$$

с нормировочной константой $N_2 = \sqrt{1/\pi A_2}$, $A_2 = \int_0^\infty e^{-2\lambda_2 \rho^2} \rho^3 d\rho = 1/8\lambda_2^2$. Полные

энергии и волновые функции низших состояний мелкой донорной примеси были найдены в [30] минимизацией энергии для различных значений параметра b и параметра тонкой структуры. Используя уравнения (1) и (2), а также выражения (4) и (6) для нормированных волновых функций 1S и $2P^+$ состояний, после интегрирования по азимутальному углу для дипольного матричного элемента перехода $1S - 2P^+$ получим:

$$d_{1S \to 2P_{x}}(\alpha, b) = ea_{B}^{*} \frac{\int_{0}^{\infty} \exp(-\lambda_{1}\rho^{2}) \exp(-\lambda_{2}\rho^{2})\rho^{3}d\rho}{\sqrt{A_{1}(\lambda_{1})A_{2}(\lambda_{2})}},$$
(7)

где $a_B^* = \hbar^2 \chi / me^2 - эффективный радиус Бора в ОСГ. Аналогично мы получим следующее выражение для дипольного матричного элемента перехода <math>2S - 2P^+$, используя уравнения (1) и (2) и выражения (5) и (6), после интегрирования по азимутальному углу:

$$d_{2S \to 2P_x}(\alpha, b, \gamma) = ea_B^* \frac{\int\limits_{0}^{\infty} \exp(-\lambda_3 \rho^2) \exp(-\lambda_2 \rho^2) (1 - \delta \rho^2) \rho^3 d\rho}{\sqrt{A_3(\lambda_1) A_2(\lambda_2)}}.$$
 (8)

В уравнениях (7) и (8) λ_1 , λ_2 , λ_3 и δ – вариационные параметры, полученные после процедуры минимизации для состояний 1*S*, 2*P*⁺ и 2*S*, соответственно. Результаты численного расчета дипольных матричных элементов для переходов примесного электрона из первого метастабильного состояния 1*S* в возбужденное состояние 2*P*⁺, а также из второго метастабильного состояния 2*S* в состояние 2*P*⁺ представлены на рис.1 (в единицах ea_B^*) в зависимости от параметра тонкой структуры при фиксированном значении параметра *b* = 0.01 в магнитном поле с $\gamma = \hbar \omega/2R^* = 10$; эффективный Ридберг $R^* = \frac{me^4}{2\chi^2\hbar^2} = 2$ мэВ.



Рис.1. Дипольный матричный элемент для межуровневых переходов мелкой примеси в ОСГ в зависимости от постоянной тонкой структуры (в единицах ea_B^*) при b=0.01 и $\gamma = 10$: кривая l для перехода $1S \rightarrow 2P^+$; кривая 2 для перехода $2S \rightarrow 2P^+$.

2.2. Когерентный контроль населенности метастабильных состояний

Рассмотрим здесь взаимодействие двух FC лазерных импульсов с дипольноразрешенными переходами между двумя метастабильными состояниями и одним возбужденным состоянием квантовой системы с Λ -конфигурацией энергетических уровней [30]. Результаты нашего анализа применимы к квантовой системе, состоящей из наинизших энергетических состояний мелкой примеси в монослое графена (см. рис.2). В описании взаимодействия используется полуклассический подход, где лазерное излучение рассматривается классически, а электронные состояния примеси – в рамках квантовой механики. Лазерное поле E(t) состоит из



Рис.2. Схема взаимодействия бихроматического FC импульса с двумя метастабильными состояниями $|1\rangle$ и $|3\rangle$ и возбужденным состоянием $|2\rangle$. Ω_k и Γ_k (k = 1,2) – соответствующие частоты Раби и скорости спонтанной релаксации.

двух лазерных импульсов:

$$E(t) = 1/2\Sigma_{j=1}^{2} \{ E_{j} \exp(i\omega_{j}t) + c.c. \}.$$
(9)

Схема взаимодействия представлена на рис. 2. Учитывая процессы релаксации, систему можно описать матрицей плотности ρ̂, для которой временная эволюция дается основным уравнением:

$$i\hbar\partial\hat{\rho}/\partial t = \left[\hat{H}\hat{\rho}\right] + \hat{R},$$
 (10)

где

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} 0 & \Omega_1 & 0 \\ \Omega_1^* & \varepsilon_1(t) & \Omega_2^* \\ 0 & \Omega_2 & \varepsilon_1(t) - \varepsilon_2(t) \end{pmatrix}$$
(11)

И

$$\hat{R} = i\hbar \begin{pmatrix} \Gamma_{1}\rho_{11} & (-\gamma_{12} - \Gamma/2)\rho_{12} & -\gamma_{13}\rho_{13} \\ (-\gamma_{12} - \Gamma/2)\rho_{21} & -\Gamma\rho_{22} & (-\gamma_{23} - \Gamma/2)\rho_{23} \\ -\gamma_{13}\rho_{31} & (-\gamma_{23} - \Gamma/2)\rho_{32} & \Gamma_{2}\rho_{33} \end{pmatrix}.$$
(12)

Оператор \hat{H} в уравнении (11) – гамильтониан в представлении взаимодействия, а \hat{R} – оператор релаксации. Зависящие от времени частоты Раби $\Omega_j = (1/2\hbar)E_j(t)d_{j2}\exp(i\beta t^2) = W_j f(t)\exp(i\beta t^2)$ имеют (в общем случае разные) комплексные амплитуды W_j (j = 1, 2). В дальнейшем предполагаем, что два импульса, образующие бихроматический FC лазерный импульс, имеют одинаковую огибающую гауссовской функции $f(t) = \exp\left[-(t/\tau_p)^2\right]$; d_{j2} – дипольный матричный элемент перехода между основным состоянием $|j\rangle$ и возбужденным состоянием $|2\rangle$ (j = 1,3) (см. рис.2). $\Gamma = \Gamma_1 + \Gamma_2$ – скорость спонтанного распада возбужденного состояния $|2\rangle$, где Γ_1 и Γ_2 – скорость спонтанной релаксации соответственно к основным состояниям $|1\rangle$ и $|3\rangle$, $\Gamma = \frac{1}{\tau_{rel}}$, где τ_{rel} – время релак-

сации возбужденного состояния; γ_{kj} – скорость дефазировки оптической когерентности между состояниями $|k\rangle$ и $|j\rangle$ (k, j = 1,2,3). Мы предполагаем одинаковый линейный частотный чирп для обоих импульсов, образующих бихроматический импульс:

$$\omega_j = \omega_{j0} + \beta t \ (j = 1, 2), \tag{13}$$

где ω_{j0} – центральная частота *j*-го лазерного импульса, β – скорость чирпа. $\varepsilon_1(t)$ и $\varepsilon_2(t)$ – расстройки частоты от резонансных частот для дипольно-разрешенных переходов (см. рис. 2):

$$\varepsilon_1(t) = \omega_1(t) - \omega_{12}^0, \quad \varepsilon_2(t) = \omega_2(t) - \omega_{32}^0,$$
 (14)

где ω_{12}^0 и ω_{32}^0 – резонансные частоты дипольно-разрешенных переходов.

3. Перенос населенности между двумя метастабильными состояниями бихроматическим FC импульсом с рамановской расстройкой

В этом разделе рассмотрим взаимодействие бихроматического FC лазерного импульса с квантовой системой, изображенной на рис.2, полагая, что частоты обоих импульсов, образующих бихроматический импульс, проходят через резонанс с соответствующими переходами. Предполагается, что изначально населенность системы находится в одном из метастабильных состояний, например в состоянии |1, как показано на рис. 2.

3.1. Случай короткого FC бихроматического импульса

Сначала рассмотрим случай коротких лазерных импульсов, длительность которых намного меньше всех времен релаксации системы. Как показывают представленные ниже результаты численных расчетов, полный переход населенности из состояния $|1\rangle$ в состояние $|3\rangle$ происходит только тогда, когда бихроматический FC импульс вступает вначале в резонанс с переходом из первоначально занятого метастабильного состояния $|1\rangle$ в возбужденное состояние, и только после этого – с переходом между возбужденным и вторым, первоначально пустым метастабильным состоянием $|3\rangle$. Поскольку для импульсов, образующих бихроматический импульс, предполагается одинаковая временная форма без запоздания между ними, то временную последовательность вхождения в резонанс можно установить путем изменения центральных частот импульсов ω_{j0} . Следует отметить, что комбинационная расстройка

$$\omega_{R} = \varepsilon_{1}(t) - \varepsilon_{2}(t) = \varepsilon_{10} - \varepsilon_{20} = \left(\omega_{10} - \omega_{12}^{0}\right) - \left(\omega_{20} - \omega_{32}^{0}\right)$$
(15)

не зависит от времени в принятых выше условиях. Как следует из уравнений (13)–(15), при положительной рамановской расстройке ($\omega_R > 0$) и положительном чирпе ($\beta > 0$) резонанс будет достигнут сначала при переходе между первоначально занятым состоянием $|1\rangle$ и возбужденным состоянием $|2\rangle$, и только

после этого при переходе между первоначально пустым состоянием $|3\rangle$ и возбужденным состоянием $|2\rangle$. Последовательность достижения резонанса будет изменена на противоположную путем изменения знака рамановской расстройки ω_R или направления чирпа частоты. Ниже, на рис.3 представлены результаты численного анализа уравнений для элементов матрицы плотности (см. уравнения (10)–(12)), демонстрирующие динамику населенностей состояний в поле бихроматического лазерного импульса в предположении, что длительность импульса много меньше всех времен релаксации системы ($\Gamma \tau_p \ll 1$, $\gamma_{ij} \tau_p \ll 1$, i, j = 1, 2, 3).



Рис.3. Перенос населенности из первоначально заселенного состояния $|1\rangle$ в состояние $|3\rangle$ в поле бихроматического FC лазерного импульса при скорости чирпа $\beta = 15/\tau_p^2$. Временная переменная нормируется по длительности импульса: $t^* = t/\tau_p$; $n_j = \rho_{jj}$ (j = 1, 2, 3) – населенность *j*-го состояния. Используемые параметры: амплитуда частоты Раби импульсов, формирующих FC бихроматический импульс $W_1 = W_2 = 30 / \tau_p$: (a) – для рамановской расстройки $\omega_R > 0$ ($\varepsilon_{10} = 15/\tau_p$, $\varepsilon_{20} = 0$); и (b) – для рамановской расстройки $\omega_R < 0$ ($\varepsilon_{10} = -15/\tau_p$, $\varepsilon_{20} = 0$).

Далее для простоты будем считать, что амплитуды частот Раби импульсов, образующих бихроматический импульс, равны между собой. Как следует из рис. За, полный переход населенности из первоначально заселенного метастабильного состояния $|1\rangle$ в другое, изначально пустое метастабильное состояние $|3\rangle$, происходит при незначительном возбуждении системы, если лазерный импульс вступает в резонанс вначале с первоначально заселенным метастабильным состоянием. Напротив, система возбуждается, если резонанс происходит вначале при переходе из первоначально пустого состояния $|3\rangle$ в возбужденное состояние

2> (рис. 3b).

3.2. Влияние процессов релаксации

В этой части анализируется влияние релаксационных процессов на перенос населенности, рассмотренный в предыдущей части. В отдельности рассматриваются влияние спонтанного распада и дефазировки. Вначале предположим, что длительность бихроматического лазерного импульса порядка времени спонтанного затухания возбужденного состояния: $\Gamma \tau_p \sim 1$, но $\gamma_{ij} \tau_p \ll 1$ (*i*, *j* = 1,2,3).

Ниже представлены результаты моделирования для тех же параметров, что и выше, с включением в систему уравнений для элементов матрицы плотности дополнительного релаксационного члена $\Gamma = \Gamma_1 + \Gamma_2$, см. уравнения (10)–(12). В дальнейшем предположим одинаковую скорость затухания дипольных переходов: $\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma/2$.

Как показывает анализ, при малой величине возбуждения системы, как в нашем случае, действие релаксации проявляется при длительности лазерного импульса τ_p , примерно в 20 раз превышающей время релаксации возбужденного состояния, см. рис. 4с. При большей длительности импульсов преобладают некогерентные процессы оптической накачки, приводящие к примерно равным (в случае предполагаемых равных амплитуд частот Раби импульсов, формирующих бихроматический импульс) заселенностям метастабильных состояний с незначительной когерентностью между ними (см. рис. 5). На следующем этапе рассматривается влияние дефазировки на перенос заселенности квантовых состояний. Как показывает наш анализ, наибольшее влияние на обсуждавшийся выше перенос населенности между двумя метастабильными состояниями, оказывает дефазировка когерентности ρ_{13} (рис. 6).

Для оценки вероятности спонтанного радиационного распада возбужденного уровня |2> при переходе электрона на метастабильный уровень |1> воспользуемся известной формулой [32]:



Рис.4. Перенос населенности из первоначально заселенного состояния $|1\rangle$ в состояние $|3\rangle$. Временная переменная нормируется по длительности импульса: $t^* = t/\tau_p$. Используемые параметры те же, что на рис. 3, кроме: (a) $\Gamma \tau_p = 1$ (b) $\Gamma \tau_p = 5$ (c) $\Gamma \tau_p = 20$; (d) $\Gamma \tau_p = 100$.



Рис.5. Зависимость абсолютной величины когерентности ρ_{13} между двумя метастабильными состояниями от нормированного времени ($t^* = t/\tau_p$) для случая, представленного на рис. 3b.



Рис. 6. (а) Перенос населенности из первоначально заселенного состояния $|1\rangle$ в состояние $|3\rangle$. (b) Зависимость абсолютного значения когерентности ρ_{13} от нормированного времени (временная переменная нормируется по длительности импульса: $t^* = t/\tau_p$). Используемые параметры те же, что на рис.4с, за исключением $\gamma_{13}\tau_p = 20$, где γ_{13} – скорость дефазировки когерентности ρ_{13} .

$$\Gamma_1 = \frac{4}{3\hbar c^3} \omega_{12}^3 d_{12}^2 \,. \tag{16}$$

Согласно (16), для вероятности перехода с возбужденного уровня $|2\rangle$ на уровень $|1\rangle$, с учетом $\omega_{12} = 4 \times 10^{13} \Gamma \mu$, $d_{12} \approx 0.4 ea_B^*$ ($a_B^* \approx 15 \text{ nm}$), получаем $\Gamma_1 \approx 10^6 \text{ сек}^{-1}$ и, соответственно, для времени релаксации – $\tau_{rel} \approx 10^{-6}$ сек. Такого же порядка величину получаем для вероятности спонтанного перехода электрона с возбужденного уровня $|2\rangle$ на метастабильный уровень $|3\rangle$. Для длительностей лазерного импульса, для случаев, представленных на рис. 4, соответственно находим: (a) $\tau_p = 10^{-6}$; (b) $\tau_p = 5 \times 10^{-6}$; (c) $\tau_p = 2 \times 10^{-5}$ и (d) $\tau_p = 10^{-4}$ сек, что наглядно свидетельствует о возможности экспериментальной реализации рассмотренных выше схем переноса населенности между двумя метастабильными состояниями мелкой примеси в графене без существенного возбуждения системы.

4. Заключение

С использованием вариационного подхода в перпендикулярном магнитном поле рассчитаны энергии состояний и дипольных матричных элементов для оптических переходов $1S - 2P^+$ и $2S - 2P^+$ мелкой донорной примеси в монослое графена с открытой энергетической щелью. Получены зависимости дипольных матричных элементов от значения эффективного параметра тонкой структуры и оценены скорости спонтанной релаксации. Когерентный, устойчивый и полный перенос населенности между двумя метастабильными состояниями без значительного возбуждения системы реализован с помощью короткого бихроматического чирпированного лазерного импульса. Важным условием такого переноса населенности является то, что импульс вначале вступает в резонанс с переходом из первоначально занятого метастабильного состояния в возбужденное состояние и только затем с переходом между возбужденным и вторым, изначально пуметастабильным состоянием. Показано, что при длительности стым, бихроматического лазерного импульса, сравнимой со временами релаксации системы, спонтанный распад возбужденного состояния и дефазировка релаксационных процессов приводят к неполному переходу населенности между метастабильными состояниями. При большей длительности импульса преобладают процессы некогерентной оптической накачки.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке РА в рамках проекта №21АG-1С048.

Авторы данной работы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. M. Kasevich, S. Chu. Phys. Rev. Lett., 67, 181 (1991).
- 2. J. Lawall, M. Prentiss. Phys. Rev. Lett., 72, 993 (1994).
- 3. P. Brumer, M. Shapiro. Annu. Rev. Phys. Chem. 43, 257 (1992).
- C.P. Williams, S.H. Clearwater. Explorations in Quantum Computing. Springer, London, 2011.
- 5. **D. Bouwmeester, A. Ekert, A. Zeilinger**. The Physics of Quantum Information: Quantum Cryptography, Quantum Teleportation, Quantum Computation. Springer, Berlin, 2000.
- 6. A.S. Parkins, P. Marte, P. Zoller, H.J. Kimble. Phys. Rev. Lett., 71, 3095 (1993).
- 7. J.B. Watson, A. Saprera, X. Chen, K. Burnett. Phys. Rev. A, 53, R1962 (1996).
- 8. M. Jain, H. Xia, G.Y. Yin, A.J. Merriam, S.E. Harris. Phys. Rev. Lett., 77, 4326 (1996).
- A.V. Sokolov, D.R. Walker, D.D. Yavuz, G.Y. Yin, S.F. Harris. Phys. Rev. Lett., 85, 5625 (2000).
- 10. M.D. Lukin, P.R. Hemmer, M. Loeffler, M. Scully. Phys. Rev. Lett., 81, 2675 (1998).
- E. Korsunsky, T. Halfmann, J.P. Marangos, M. Fleischhauer, K. Bergmann. Eur. Phys. J. D 23, 167 (2003).
- 12. T. Rickes, J.P. Marangos, T. Halfmann. Opt. Commun., 227, 133 (2003).
- 13. K. Bergmann, H. Theuer, B.W. Shore. Rev. Mod. Phys., 70, 1003 (1998).
- 14. R. Unanyan, M. Fleischhauer, B.W. Shore, K. Bergmann. Opt. Commun., 155, 144 (1998).
- 15. G.P. Djotyan, J.S. Bakos, Zs. Sörlei, J. Szigeti. Phys. Rev. A, 70, 063406 (2004).

- F. Vewinger, M. Heinz, R.G. Fernandez, N.V. Vitanov, K. Bergmann. Phys. Rev. Lett., 91, 213001 (2003).
- 17. N. Sangouard, S. Guérin, L.P. Yatsenko, T. Halfmann. Phys. Rev. A 70, 013415 (2004).
- L.P. Yatsenko, N.V. Vitanov, B.W. Shore, T. Rickes, K. Bergmann. Opt. Commun., 204, 413 (2002).
- 19. G.P. Djotyan, J.S. Bakos, Zs. Sörlei. Opt. Express, 4, 113 (1999).
- 20. G.P. Djotyan, J.S. Bakos, Zs. Sörlei. Phys. Rev. A, 64, 013408 (2001).
- 21. G.P. Djotyan, N. Sandor, J.S. Bakos, Zs. Sörlei. Opt. Express, 19, 17493 (2011).
- N.V. Vitanov, A.A Rangelov, B.W Shore, K. Bergmann. Rev. Modern Phys., 89, 015006 (2017).
- 23. M.M. Mahana, S. Davuluri, T.N. Dey. Phys. Rev. A, 110, 023716 (2024).
- 24. H.K. Avetissian, A Brown, G.F. Mkrtchian. Phys. Rev. A, 80, 033413 (2009).
- 25. B.P. Maddox, J.M. Mortlock, T.R Hepworth, A.P Raghuram, P.D Gregory, A. Guttridge, S.L. Cornish. Phys. Rev. Lett., 133, 253202 (2024).
- 26. C. Ding, R. Yu, X. Hao, D. Zhang. Sci. Rep., 8, 1530 (2018).
- 27. F. Wendler, E. Malic. Sci. Rep. 5, 12646 (2015).
- M. Mittendorff, F. Wendler, E. Malic, A. Knorr, M. Orlita, M. Potemski, C. Berger, W.A. de Heer, H. Schneider, M. Helm, S. Winnerl. Nat. Phys., 11, 75 (2015).
- 29. F. Wendler, E. Malic. Phys. Rev. B, 93, 035432 (2016).
- 30. A.P. Djotyan, G.P. Djotyan, A.A. Avetisyan. J. Contemp. Phys., 59, 272 (2024).
- 31. A.P. Djotyan, K. Moulopoulos, A.A. Avetisyan. Sem. Sci. Technol., 40, 015012 (2025).
- 32. В.Б. Берестецкий, Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский. Квантовая электродинамика. Москва, Наука, 1989.

COHERENT CONTROL OF A SHALLOW IMPURITY'S QUANTUM STATES IN GRAPHENE MONOLAYER BY BICHROMATIC PHASE MODULATED LASER PULSES: INFLUENCE OF RELAXATION PROCESSES

A.A. AVETISYAN, A.P. DJOTYAN, G.P. DJOTYAN, A.L. VARTANIAN, A.L. ASATRYAN

The dipole matrix elements for optical transitions $1S - 2P^+$ and $2S - 2P^+$ of a shallow donor impurity in a graphene monolayer with an opened energy gap are calculated in a perpendicular magnetic field using a variational approach. In the next step, population transfer between the two metastable states 1S and 2S by a bichromatic phase modulated (frequency chirped) laser pulse is analyzed taking into account relaxation processes in the system. It is demonstrated that such population transfer may be performed in a robust way without a considerable population of the excited state $2P^+$ if duration of the bichromatic pulse is much shorter than the relaxation times of the system. Spontaneous decay of the excited state and dephasing relaxation processes result in not complete transfer of the population between the metastable states. Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.62–70 (2025) УДК 532.783 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-62

СВЕТО-ИНДУЦИРОВАННАЯ СКАЧКООБРАЗНАЯ ГИДРОДИНАМИЧЕСКАЯ ИНВЕРСИЯ НАПРАВЛЕНИЯ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ОРИЕНТАЦИИ В ЖИДКИХ КРИСТАЛЛАХ

В.С. АКОБЯН¹, Т.В. ГАЛСТЯН², Р.С. АКОПЯН^{1*}

¹Ереванский государственный университет, Ереван, Армения ²Laval University, Quebec, Canada

*e-mail: rhakob@ysu.am

(Поступила в редакцию 25 декабря 2024 г.)

Численно решена задача о лазерно-индуцированной гидродинамической переориентации (ЛИГП) директора гибридно-ориентированного нематического жидкого кристалла (НЖК) с прозвольными граничными условиями. ЛИГП изучена при различных мощностях лазера и для двух противоположных направлений градиента температуры. Градиент скорости гидродинамического потока приводит к небольшому увеличению кривизны гибридной ориентации, когда свет создает градиент температуры вовне кривизны. Кривизна меняет знак, когда свет создает градиент температуры снаружи вовнутрь кривизны гибридной ориентации. Исследована также зависимость переориентации от энергии крепления молекул к границам.

1. Введение

Лазерно-индуцированные гидродинамические переориентации (ЛИГП) в жидких кристаллах (ЖК) изучались во многих работах [1-5]. Были изучены три механизма лазерно-индуцированных гидродинамических движений: гравитационный механизм Рэлея-Бенара, термокапиллярный механизм Марангони и механизм прямого объемного расширения. Все эти предсказания получили экспериментальное подтверждение [5]. Недавно лазерно-индуцированные процессы захвата, транспортировки и устойчивых периодических движений микрочастиц демонстрировались с помощью жидкокристаллических пленок [6]. В жидкокристаллических пленках со свободной поверхностью, подвергающихся нагреву световым лучом, возникают разнообразные движения микрочастиц в результате конвекции Марангони в сочетании с упругими деформациями. В работе [7] продемонстрирована оптически индуцированная тепловая нелинейность в толстой нематической жидкокристаллической ячейке, возникающая за счет частичного поглощения света покрытием ITO (indium-tin-oxide) в инфракрасном диапазоне спектра. Этот процесс может быть использован для множества приложений, в числе которых пространственное формирование и определение характеристик фемтосекундных импульсов [8]. Различные сценарии формирования гидродинамических потоков в микроразмерных гибридных выравненных нематических каналах численно рассмотрены в работе [9]. Отмечается, что характеристика гидродинамического потока зависит не только от градиента температуры, но и от энергий закрепления [10, 11]. В работе [12] используются ферроэлектрические микропластинки и прикладывается электрическое поле. В этом случае пластинки используются в качестве проводника для молекул ЖК. Переориентация ЖК используется для анализа электрического поля, создаваемого при облучении светом в кристаллах ниобата лития, легированных железом. Характеристика электрического поля, оптически генерируемого внутри ЖКслоя, крайне желательна в связи с реализацией новых оптических устройств, которые будут интегрированы в оптофлюидические платформы [13].

Гидродинамические потоки в ЖК могут быть идуцированы также электрическими полями. Их можно использовать [14] для управления движением коллоидных частиц. Замена изотропной жидкой среды на ЖК приводит к резким изменениям в статическом и динамическом поведении коллоидных частиц. Особый интерес представляют ситуации, когда коллоиды перемещаются через ЖКсреду, движимые внешним электрическим полем. Приложение электрического поля к микросферам, взвешенным в жидком кристалле, вызывает перемещение частиц в плоскости, перпендикулярной направлению приложенного поля [15]. В зависимости от амплитуды и частоты приложенного электрического поля выше порогового значения может наблюдаться множество различных режимов движения, которые могут приводить к линейным, круговым или случайным траекториям частиц. Оказывается, гидродинамические движения молекул ЖК могут быть индуцированы электрическим полем даже достаточно далеко от пределов воздействия электрического поля [16]. Локальные импульсы электрического потенциала могут генерировать значительные дальнодействующие морфологические изменения в самоориентированных молекулярных пленках. Это позволяет предположить, что должны происходить соответствующие возмущения в клеточной мембране. Авторы [16] полагают, что эти гидродинамические движения индуцируются градиентом давления, вызванным увеличением ориентационного порядка молекул в электрическом поле и уменьшением занимаемого ими объема (механизм объемного расширения). Эти морфологические изменения могут влиять на динамику распространения потенциала действия, влияя на ионный гейтинг и изменяя скорость диффузии и транспорта ионов вдоль и поперек мембраны.

В нашей недавней работе [17] было сообщено об экспериментальном исследовании динамики оптических свойств гибридно-ориентированного нематического жидкого кристалла (НЖК) под действием потока, вызванного механизмом объемного расширения. Целью настоящей работы являлось подробное теоретическое численное изучение полученных экспериментальных результатов, а также предсказание новых проявлений данного механизма.

2. Основное уравнение переориентации

Рассмотрим горизонтально расположенную плоскую капиллярную ячейку с НЖК (рис. 1а). На нижней подложке молекулы ЖК ориентированы перпендикулярно к стенке, а на верхной – параллельно. Нормаль к стенкам ячейки направим вдоль оси *z*, а ось *x* – в плоскости ячейки.

Начало координат будет располагаться на левом нижнем краю ячейки. При



Рис.1. (а) Схематическое изображение механизма прямого объемного расширения, (b) и (d) представление ЖК в виде «гибкой ленты», (c) изменение знака гибридности НЖК по сравнению с ориентацией (a).

необходимости к двум концам ячейки могут быть прикреплены дополнительные объемы: слева– для усиленного поглощения света добавлением небольшого количества красителя, а справа – для отлива избыточного ЖК. Падающий свет с левого края ячейки сильно поглощается. Поглощенная световая энергия нагревает НЖК, вызывая его тепловое расширение. Градиент давления, направленный по оси x, приводит к пуазейлевскому течению НЖК. Скорость гидродинамического потока в ячейке $\mathbf{v} = v \mathbf{e}_x$, а также задачу в целом, считаем однородными в плоскости ячейки (x, y): $\partial/\partial x = \partial/\partial y = 0$. На подложках имеем прилипание молекул, и градиент скорости переориентирует молекулы благодаря сильной связи гидродинамических и ориентационных движений в НЖК [18]. В описанной схеме и в приближении слабых возмущений можно полагать, что единичный вектор в направления преимущественной ориентации молекул – директор **n** (причем, направления **n** и –**n** эквивалентны [18]) в процессе потока не выходит из плоскости (x, z) начальной ориентации.

Поведение рассматриваемой системы в общем случае описывается набором трех нелинейных динамических уравнений: для переориентации директора НЖК, гидродинамического движения (уравнение Навье–Стокса) и теплопроводности. Процесс начинается с изменения температуры за счет поглощения. В работе [19] с помощью решения линеаризованных и стационарных уравнений теплопроводности и Навье–Стокса получено уравнение угла переориентации $\phi(z, t)$ директора НЖК:

$$\frac{\partial \varphi}{\partial \tau} = (K + \Delta \sin^2 \varphi) \frac{\partial^2 \varphi}{\partial \zeta^2} + \frac{1}{2} \Delta \sin(2\varphi) \left(\frac{\partial \varphi}{\partial \zeta}\right)^2 + DP(2\zeta - 1)(\alpha \sin^2 \varphi - 1), \quad (1)$$

где $\tau = K_1 t/(\gamma L^2)$ – безразмерное время, $\zeta = z/L$ – безразмерная координата в направлении скорости потока, $K = K_3/K_1$, $\Delta = (K_1 - K_3)/K_1$, $D = 6\beta\chi V\alpha_2/(K_1 \rho c_p l)$, $\gamma = \alpha_3 - \alpha_2$, K_i – упругие константы Франка, α_i – коэффициент Лесли НЖК, ρc_p – удельная объемная теплоемкость (в эрг/см³К), χ – коэффициент поглощения (в см⁻¹), P – интенсивность лазерного излучения (в эрг/см² сек), V – объем поглощающей жидкости, а β – коэффициент теплового расширения (в K⁻¹), L – толщина ячейки по координате *z*, l – ширина ячейки по координате *y*.

Заметим, что уравнение (1) в одноконстантном приближении для упругих постоянных ($K_1 = K_3$) имеет вид известного уравнения «управляемого затуханием синус–Гордона». Оно описывает лазерно-индуцированное (без порога) гидродинамическое течение в НЖК с директором, ограниченным в плоскости (x, z). Мы собираемся решить это уравнение с помощью программы «Mathematica 11». Тем не менее, чтобы решить уравнение, нам необходимо определить начальные и граничные условия, связанные с энергиями закрепления.

3. Граничные условия

Теперь нам нужно зафиксировать ориентацию нематического директора на соответствующих поверхностях в определенных направлениях и с определенными энергиями закрепления. Это достигается различными способами, обычно путем осаждения ориентирующего слоя, расположенного между ЖК материалом и твердой подложкой, который воздействует на молекулы ЖК, наклоняя нематический директор (т.е. механическим трением) в определенном направлении по отношению к нормали к поверхности. Знание ориентации нематического директора на интерфейсе и энергии его закрепления очень важно для оптимальной конструкции ЖК ячейки, которая, в свою очередь, определяет производительность устройства. Для граничных условий угла переориентации часто делается приближение сильного закрепления; это означает, что ориентация директора на границе фиксирована и не зависит от внешних возбуждений. Здесь мы обсуждаем более общий случай, поэтому мы не рассматриваем бесконечную энергию закрепления, и в свободную энергию должен быть включен поверхностный вклад. Предлагаем способ оценки энергии закрепления ЖК путем определения угла наклона ЖК на границе с подложкой. Для этой задачи в приближении Рапини [20] граничные условия имеют следующий вид:

$$(K + \Delta \sin^2 \varphi) \frac{\partial \varphi}{\partial \zeta} - \Sigma \sin(2\varphi) = 0.$$
 (2)

Здесь $\Sigma = \sigma L/(2K_1) - 6$ езразмерная энергия закрепления, σ – коэффициент поверхностной энергии закрепления (в эрг/см²). Поскольку мы изучаем влияние энергий закрепления на переориентацию, они должны быть представлены на граничных условиях. Другими словами мы определяем граничные условия, которые зависят от энергий закрепления. Значения последних обычно находятся в диапазоне 10^{-4} – 10^{-1} эрг/см² (в нашем случае $\Sigma = 10^{-1}$ –10) [21]. Если энергия закрепления составляет 10^{-1} эрг/см² ($\Sigma = 10$), то граничное условие является сильным, что означает отсутствие изменения ориентации на границе. Для гибридноориентированных НЖК начальное условие имеет следующий вид:

$$\varphi(\zeta, 0) = \frac{\pi}{2}\zeta. \tag{3}$$

Это означает, что на нижней стенке мы имеем гомеотропную ориентацию, а на верхней стенке молекулы ориентированы в плоскости.

Благодаря своей эластичности НЖК можно рассматривать как «гибкую ленту». Это означает, что под действием внешних сил (в частности, гидродинамических) НЖК как целое может менять свою гибридную ориентацию (кривизну гибридности). В наших расчетах мы изучили две конфигурации падения света: на левый край (*x* = 0) ячейки и на противоположный край.

4. Численные решения и обсуждение

Уравнение (1) решалось для двух направлений светового падения и гидродинамического потока с граничными и начальным условиями (2) и (3) с помощью программы «Mathematica 11». В расчетах для НЖК МВВА [22] принималось: $K_1 = 6.2 \times 10^{-7}$ и $K_3 = 8.2 \times 10^{-7}$ эрг/см, $\alpha_2 = 0.8$ и $\alpha_3 = 0.012$ П, $\beta = 10^{-3} K^{-1}$, $\rho c_p = 1 \text{ Дж/см}^3 K$, $V = 1 \text{ см}^3$, L = 12 мкм и l = 0.1 см. НЖК МВВА и геометрические размеры ячейки выбраны нами в качестве примера. Мы исследуем динамику переориентации директора и его зависимость от мощности лазерного излучения.

Основные полученные результаты могут быть обобщены следующим образом: когда энергия поверхностного закрепления у нижней стенки (изначально гомеотропно- ориентированной) составляет меньше 10⁻³ эрг/см² (слабое граничное условие), а энергия верхней стенки (изначально планарно-ориентированной) составляет больше 10^{-1} эрг/см² (сильное граничное условие) и свет падает на левый край ячейки (x < 0, рис.1a), т.е. снаружи вовнутрь кривизны «гибкой ленты», то гидродинамический поток, пытаясь заставить молекулы принять направление потока, приближает ячейку к однородно-планарной ориентации. На рис.2а представлено, как изменяется переориентация, вызванная различной мощностью лазера, через 0.9 секунды после начала гидродинамического потока. 0.9 секунды – это время, после которого переориентация насыщается в случае мощности лазера 0.5 мВт/см². Надо отметить, что гидродинамическое движение и переориентация директора возникают без порога интенсивности света и уменьшаются с увеличением толщины ячейки. Мы видим, что слабое лазерное излучение (0.05 мВт/см²) почти не изменяет ориентации, и мощности лазера 0.5 мВт/см² достаточно для переориентации молекул в сторону потока, но гораздо меньше, чем это необходимо для фазового перехода НЖК.

Гомеотропно-ориентированные молекулы отрываются от нижней подложки и направляются в сторону потока, т.е. стремятся к планарной ориентации. Важно заметить, что, если необходимо, то со стороны падения света можно прикрепить большой объем с ЖК (не показанный на рис.1), сообщающийся с ячейкой. Тем самым поглощение света можно сделать более эффективным. Если мощность превышает 0.5 мВт/см², то переориентация происходит быстрее и угол переориентации становится больше. Это легко увидеть на рис.2b, где показано распределение угла переориентации по толщине ячейки и во времени под действием лазерного излучения мощностью 1 мВт/см². Кроме того, поскольку поверхностная энергия закрепления нижней стенки меньше, угол переориентации молекул вблизи нижней стенки больше.

Когда энергия поверхностного закрепления нижней стенки составляет 10^{-1} , а энергия верхней стенки – 10^{-3} эрг/см², и опять свет падает на левый край ячейки (рис.1а), т.е. градиент температуры направлен в сторону снаружи вовнутрь кривизны «гибкой ленты», то гидродинамический поток стремится повернуть гибридность и «гибкая лента» меняет знак кривизны (рис.3). Таким образом, происходит скачкообразное изменение направления изогнутости гибридности из состояния рис.1а в состояние рис.1с, или из «гибкой ленты» (b) в «гибкую ленту» (d). Это происходит в тот момент, когда энергия деформации становится больше



Рис.2. Угол переориентации при наложении слабого граничного условия на нижнюю и сильного граничного условия на верхнюю стенки. Свет падает на левый край ячейки. (а) Угол между директором и осью *z* для различных *z* и мощностей лазера: кривая *l* соответствует начальному состоянию (t = 0 с). Остальные кривые соответствуют переориентации, вызванной через 0.9 с после запуска лазерного излучения. Кривая 2 - P = 0.05, кривая 3 - P = 0.5 и кривая 4 - P = 1 мВт/см². (b) Распределение угла переориентации по толщине ячейки и изменение во времени при фиксированной мощности 1 мВт/см².



Рис.3. Угол переориентации при наложении сильного граничного условия на нижнюю и слабого граничного условия на верхнюю стенки. Свет падает на левый край ячейки. (а) Угол между директором и осью *z* для различных *z* и мощностей лазера: кривая *l* соответствует начальному состоянию (t = 0 с). Остальные кривые соответствуют переориентации, вызванной запуском лазерного излучения через 1 с. Кривая 2 - P = 0.05, кривая 3 - P = 0.5 и кривая 4 - P = 4 мВт/см². (b) Распределение угла переориентации по толщине ячейки и изменение во времени при фиксированной мощности 4 мВт/см².

энергии закрепления верхней поверхности. После скачкообразного обращения кривизны «гибкой ленты» гидродинамический поток направляется уже изнутри наружу, и мы имеем дополнительное увеличение кривизны.

В этом случае при малых мощностях лазера (0.05 мВт/см²), постепенно происходит слабая переориентация, зависимость переориентации от z/L близка к линейной, и реверсирования кривизны не происходит. При более высоких мощностях лазера (4 мВт/см²) происходит резкое изменение кривизны «гибкой ленты». На рис.3b показано распределение угла переориентации по толщине ячейки и во времени под действием лазерного излучения 4 мВт/см². В случае обратной ситуации (зона экспозиции света находится справа, рис.1а) для градиента температуры, когда скорость потока направлена наружу от кривизны «гибкой ленты», кривизна просто увеличивается. На рис.4а и рис.5а представлено как изменяется переориентация, вызванная различной мощностью лазерного излучения, соответственно через 0.5 и 0.7 с после начала возникновения гидродинамического потока. Это необходимые периоды времени для окончательной переориентации молекул под действием лазерного излучения с мощностью 0.5 мВт/см².

Когда мы имеем малую энергию закрепления на нижней стенке, ориентация молекул вблизи этой стенки изменяется, стремясь стать планарной (рис.4а). А



Рис.4. Угол переориентации при наложении слабого граничного условия на нижнюю и сильного граничного условия на верхнюю стенки. Свет падает с правого края ячейки. (а) Угол между директором и осью *z* для различных *z* и мощностей лазера: кривая *l* соответствует начальному состоянию (t = 0 с, без переориентации). Остальные кривые соответствуют переориентации, вызванной через 0.5 с после запуска лазерного излучения. Кривая 2 - P = 0.05, кривая 3 - P = 0.5 и кривая 4 - P = 4 мВт/см². (b) Распределение угла переориентации по толщине ячейки и изменение во времени при фиксированной мощности 4 мВт/см².



Рис.5. Угол переориентации при наложении сильного граничного условия на нижнюю и слабого граничного условия на верхнюю стенки. Свет падает с правого края ячейки. (а) Угол между директором и осью *z* для различных *z* и мощностей лазера: кривая *l* соответствует начальному состоянию (t = 0 с). Остальные кривые соответствуют переориентации, вызванной через 0.7 с после запуска лазерного излучения. Кривая 2 - P = 0.05, кривая 3 - P = 0.5 и кривая 4 - P = 4 мВт/см². (b) Распределение угла переориентации по толщине ячейки и изменение во времени при фиксированной мощности P = 4 мВт/см².
когда мы имеем малую энергию закрепления на верхней стенке, где молекулы изначально ориентированы планарно, гидродинамический поток почти не изменяет ориентацию молекул на границах (рис.5а). Исследование переориентации в результате поглощения мощности лазера 0.05 мВт/см² показывает, что переориентация происходит медленно и угол переориентации незначителен. В случае высокой мощности – 4 мВт/см² кривизна становится больше и переориентация происходит быстрее (рис.4а и рис.4b).

В случае, когда свет падает на правый край ячейки, планарно-ориентированные молекулы почти не меняют своей ориентации и остаются планарными даже когда поверхностная энергия закрепления составляет 10⁻⁴ эрг/см². Это объясняется тем, что планарно- ориентированные молекулы имеют направление потока, которое считается предпочтительным для молекул.

5. Заключение

В работе представлен первоначально гибридно-ориентированный НЖК и изучены переориентации молекул в зависимости от граничных условий при различных мощностях лазерного излучения. Исходно гибридно-ориентированный НЖК представили в виде «гибкой ленты». Было установлено, что в случае, когда температурный поток направлен изнутри наружу кривизны «гибкой ленты» и мощность лазера не слишком высока, изменения кривизны не происходит, а большие потоки приводят к углублению кривизны. При направлении теплового потока вовнутрь кривизны «гибкой ленты» кривизна деформируется более существенно и деформация увеличивается со временем. «Гибкая лента» меняет знак своей кривизны в тот момент, когда энергия деформации становится больше энергии поверхностного закрепления на стенке с планарной начальной ориентацией, и принимает форму с меньшей энергией деформации. При этом гидродинамическая скорость направляется за пределы обращенной кривизны и приносит дополнительное небольшое увеличение кривизны. Время реверсирования зависит от параметров НЖК и энергии поверхностного сцепления. Последняя зависит от метода обработки поверхности. При более высоких интенсивностях процесс переориентации происходит быстрее. Разработка и реализация этой концепции может стать новым косвенным способом измерения энергии сцепления НЖК. Следует отметить, что в нашем случае лазерно-индуцированное гидродинамическое течение не имеет порога по интенсивности света, длина волны света связана только с поглощением и не использовалась в расчетах, расчеты являются общими для всех НЖК.

Все подтверждающие данные можно получить у авторов по соответствующему запросу.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке РА в рамках научного проекта № 21AG-1C088.

ЛИТЕРАТУРА

1. Y.K. Kim, B. Senyuk, O.D. Lavrentovich. Nat Commun., 3, 1133 (2012).

- 2. I. Nys. Liq. Cryst. Today., 29, 65 (2020).
- 3. R.S. Akopyan, N.V. Tabiryan, T. Tschudi. Phys. Rev. E, 49, 3143 (1994).

- D.V. Shmeliova, S.V. Pasechnik, S.S. Kharlamov, A.V. Dubtsov, A.V. Zakharov, S. Loebner, S. Santer. Symmetry, 15, 722 (2023).
- 5. R.S. Akopyan, R.B. Alaverdyan, L.Kh. Mouradian, H.Ye. Seferyan, Yu.S. Chilingarian. Quantum Electronics, 33, 81 (2003).
- 6. S. Shvetsov, T. Orlova, A. Hayrapetyan, A. Vasil'ev, M. Rafayelyan. Soft Matter, 20, 6920 (2024).
- 7. M. Sharma, M. Sharma, T. Ellenbogen. Laser Photonics Rev., 14, 2000253 (2020).
- V.M. di Pietro, A. Jullien, U. Bortolozzo, N. Forget, S. Residori. Laser Phys Lett., 16, 015301 (2018).
- 9. I. Sliwa, P.V. Maslennikov, A.V. Zakharov. Phys. Rev. E, 103, 062702 (2021).
- 10. A.V. Zakharov, A.A. Vakulenko. J. Chem. Phys., 127, 084907 (2007).
- 11. A.V. Zakharov, A.A. Vakulenko. Phys. Solid State, 52, 1542 (2010).
- M. Škarabot, M. Maček Kržmanc, L. Rupnik, G. Lahajnar, D. Suvorov, I. Muševič. Liq. Cryst., 48, 385 (2021).
- L. Lucchetti, K. Kushnir, V. Reshetnyak, F. Ciciulla, A. Zaltron, C. Sada, F. Simoni. Opt. Mater., 73, 64 (2017).
- 14. O.D. Lavrentovich. Soft Matter, 10, 1264 (2014).
- 15. J. Oh, H.F. Gleeson, I. Dierking. Phys. Rev. E, 95, 22703 (2017).
- 16. T. Dadalyan, T. Galstian. Sci. Rep., 9, 12346 (2019).
- 17. T. Dadalyan, K. Petrosyan, R. Alaverdyan, R. Hakobyan. Liquid Crystals, 46, 694 (2019).
- 18. P.-G. De Gennes, J. Prost. The physics of liquid crystals, Oxford university press, 1993.
- 19. R.S. Hakobyan, K.M. Sargsyan, N.V. Tabirian. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 453, 239 (2006).
- F. Simoni. Nonlinear Optical Properties of Liquid Crystals and PDLC, Teaneck, NJ: World Scientific, 1997.
- A. Marino, V. Tkachenko, E. Santamato, N. Bennis, X. Quintana, J.M. Otón, G. Abbate. J. Appl. Phys., 107, 073109 (2010).
- 22. P.R.G. Fernandes, K.A. da Silva, H. Mukai, E.C. Muniz. J. Mol. Liq., 229, 319 (2017).

LIGHT-INDUCED ABRUPT HYDRODYNAMIC INVERSION OF MOLECULAR ORIENTATION DIRECTION IN LIQUID CRYSTALS

V.S. HAKOBYAN, T.V. GALSTYAN, R.S. HAKOBYAN

The problem of laser-induced hydrodynamic reorientation (LIHR) of the director of a hybrid-oriented nematic liquid crystal (NLC) with arbitrary boundary conditions has been numerically solved. LIHR is studied at different laser powers and for two opposite directions of the temperature gradients. The hydrodynamic flow velocity gradient leads to a small increase in curvature when light creates temperature gradient in the out-of-curvature side of the hybrid orientation. The curvature changes sign when light creates temperature gradient from outside to inside the curvature of the hybrid orientation. The dependence of reorientation on the anchoring energy of molecules to the boundaries is also investigated.

Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.71–78 (2025) УДК 533.9 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-71

ТЕРМОДИНАМИКА НЕВЗАИМОДЕЙСТВУЮЩЕГО ЭЛЕКТРОННОГО ГАЗА В СИЛЬНО СПЛЮСНУТОЙ АСИММЕТРИЧНОЙ ЭЛЛИПСОИДАЛЬНОЙ КВАНТОВОЙ ТОЧКЕ InAs

А.А. НААПЕТЯН^{*}

Институт прикладных проблем физики НАН Армении, Ереван, Армения

*e-mail: n.aram2097@gmail.com

(Поступила в редакцию 26 февраля 2025 г.)

Исследованы термодинамические характеристики невзаимодействующего электронного газа в сильно сплюснутой эллипсоидальной асимметричной квантовой точке InAs. Получены формулы для энергетического спектра и функции распределения системы в больцмановском приближении. Представлены аналитические выражения для средней энергии, энтропии и теплоемкости системы. Изучены зависимости перечисленных термодинамических характеристик от температуры и геометрических параметров квантовой точки.

1. Введение

Термодинамические характеристики электронного и дырочного газов, локализованных в квантовой точке (КТ) различных форм и размеров, могут гибко управляться путем изменения геометрических параметров изучаемых структур [1-4]. При этом полностью квантованный спектр носителей заряда приводит к специфическому поведению таких параметров, как энтропия и теплоёмкость газа в зависимости от геометрических размеров КТ [5, 6]. В работе [5] рассматривалось поведение парно-взаимодействующего дырочного газа, локализованного в двояковыпуклой тонкой квантовой линзе с круговым сечением. Было показано, что благодаря аксиальной асимметрии квантовой линзы в такой системе при изменении толщины линзы может реализоваться фазовый переход первого рода.

С другой стороны, передача тепла электронному или дырочному газам, находящимся в КТ, существенным образом зависит от межуровневых расстояний изучаемой системы, т.к. поглощение или же рассеяние передаваемого количества энергии во многом обусловлены характером энергетических уровней рассматриваемого газа.

Ясно, что простейшим приближением, описывающим *N*-частичную систему, локализованную в КТ той или иной геометрии, является модель идеального газа, электронов или же дырок. В этом случае можно воспользоваться одночастичным приближением для описания энергетической структуры *N*-частичного газа. Для сравнительно простых геометрических моделей КТ вычисления статистических сумм, описывающих поведение газа невзаимодействующих частиц, может быть

реализовано аналитически точно [7, 8]. Однако современные методы получения КТ позволяют реализовывать структуры со сложной геометрией, которые характеризуются большим количеством геометрических параметров. Меняя эти параметры, можно гибко управлять спектральными, а следовательно, и термодинамическими характеристиками носителей заряда, содержащихся в них. Ясно, что для КТ со сложной геометрией даже одночастичная задача определения спектра энергии является сложной и обычно решается либо в рамках приближенных квантовомеханических методов, либо на основе численного моделирования [9, 10].

Яркими примерами КТ со сложной геометрией являются сильно сплюснутые и сильно вытянутые эллипсоидальные КТ, поведение частиц в которых можно удачно описать в рамках адиабатического приближения [11]. Традиционно обсуждаются модели эллипсоидальных и линзообразных КТ с круглым сечением [12, 13]. Вместе с тем, могут реализовываться эллипсоидальные КТ как вытянутой, так и сплюснутой геометрий, полуоси которых не равны друг другу. В связи с этим вызывает интерес изучение физических характеристик подобных систем, что позволит дать детальную картину энергетического спектра указанных систем.

В работе исследуются термодинамические характеристики невзаимодействующего электронного газа, локализованного в сильно сплюснутой эллипсоидальной КТ с не равными друг другу полуосями *a*, *b*, и *c*, удовлетворяющими следующим неравенствам: $a \neq b \neq c$ и $a \gg c$, $b \gg c$.

2. Теория

Рассмотрим невзаимодействующий электронный газ, состоящий из *N* частиц в асимметричной эллипсоидальной сильно сплюснутой квантовой точке (АЭСКТ). Схематически систему можно представить в следующем виде (рис.1).

Гамильтониан системы дается следующим соотношением:



Рис.1. Схематическое изображение АЭСКТ с электронным газом: *a*, *b* и *c* – полуоси в направлениях *OX*, *OY* и *OZ*, соответственно.

где $\mu = 0.026m_0$ – эффективная масса электрона в InAs (m_0 есть масса свободного электрона). Для потенциала ограничения $V_{\text{conf}}(x_i, y_i, z_i)$ имеем:

$$V_{\text{conf}}(x_i, y_i, z_i) = \begin{cases} 0, e^- \in A \Im C K T, \\ \infty, e^- \notin A \Im C K T. \end{cases}$$
(2)

Сильное размерное квантование в аксиальном направлении *OZ* позволяет решать задачу в рамках адиабатического приближения, в котором поведение частиц можно рассматривать в двух перпендикулярных направлениях: вдоль оси *OZ* и в плоскости *XOY*. Движение электрона вдоль оси *OZ* принимаем за быструю подсистему, а движение в плоскости *XOY* – за медленную.

В силу вышесказанного, волновая функция системы может быть представлена в виде произведения волновых функций по двум перпендикулярным направлениям [11]:

$$\Psi(\mathbf{r}_{1},...,\mathbf{r}_{N}) = \psi_{f}(z_{1};(x_{1},y_{1}),...,z_{N};(x_{N},y_{N}))\psi_{s}(x_{1},...,x_{N},y_{1},...,y_{N}), \qquad (3)$$

где $\psi_f(z_1;(x_1, y_1), ..., z_N;(x_N, y_N))$ есть волновая функция быстрой подсистемы, содержащая в качестве параметров координаты медленной (x, y), а $\psi_s(x_1, ..., x_N, y_1, ..., y_N)$ – волновая функция медленной подсистемы.

В направлении *OZ* необходимо решить задачу бесконечно глубокой потенциальной ямы с шириной $L(x_i, y_i)$, которая определяется приведенной ниже формулой:

$$L(x_i, y_i) = 2c\sqrt{1 - \frac{x_i^2}{a^2} - \frac{y_i^2}{b^2}}.$$
 (4)

Уравнение Шредингера быстрой подсистемы имеет вид:

$$\begin{bmatrix} \frac{1}{2\mu} \sum_{i=1}^{N} \hat{P}_{zi}^{2} + \sum_{i=1}^{N} V_{\text{conf}}^{z}(z_{i};(x_{i},y_{i})) \end{bmatrix} \psi_{f}(z_{1};(x_{1},y_{1}),...,z_{N};(x_{N},y_{N}))$$

$$= E_{f} \psi_{f}(z_{1};(x_{1},y_{1}),...,z_{N};(x_{N},y_{N})).$$

$$(5)$$

Волновая функция и энергетический спектр системы невзаимодействующих частиц для одномерной задачи хорошо известны и определяются следующими выражениями [11]:

$$\psi_f(z_1;(x_1,y_1),...,z_N;(x_N,y_N)) = \prod_{i=1}^N \sqrt{\frac{2}{L(x_i,y_i)}} \sin\left(\frac{\pi n_{z_i}}{L(x_i,y_i)} z_i + \delta_{n_{z_i}}\right), \quad (6)$$

$$E_f \equiv E_{n_{z_1}, n_{z_2}, \dots, n_{z_N}} = \sum_{i=1}^N \frac{\pi^2 \hbar^2}{2\mu L^2(x_i, y_i)} n_{z_i}^2.$$
(7)

Учитывая локализующее влияние стенок КТ на частицы, стремящееся направить их в сторону геометрического центра КТ, можно предположить, что они будут сконцентрированы в основном вокруг геометрического центра КТ, что приводит к выполнению условий $x_i \ll a$ и $y_i \ll b$ и позволяет разложить множитель $1/L^2(x_i, y_i)$ в выражении энергии $E_{n_{z1}, n_{z2}, ..., n_{zN}}$ в ряд Тейлора по малым параметрам x_i / a и y_i / b , после которого получается новое выражение для

 $1/L^2(x_i, y_i)$ следующего вида:

$$\frac{1}{L^2(x_i, y_i)} \approx \frac{1}{4c^2} \left(1 + \frac{x_i^2}{a^2} + \frac{y_i^2}{b^2} \right).$$
(8)

После подстановки (8) в выражение для E в уравнение (7), получаем

$$E_{n_{z_1}, n_{z_2}, \dots, n_{z_N}} = \sum_{i=1}^N \left(\frac{\pi^2 \hbar^2}{8\mu c^2} n_{z_i}^2 + \frac{\mu \Omega_a^2(n_{z_i})}{2} x_i^2 + \frac{\mu \Omega_b^2(n_{z_i})}{2} y_i^2 \right), \tag{9}$$

где $\Omega_a(n_{zi}) = \frac{\pi \hbar}{2\mu ac} n_{zi}$ и $\Omega_b(n_{zi}) = \frac{\pi \hbar}{2\mu bc} n_{zi}$. Из-за сильной сплюснутости КТ в ак-

сиальном направлении мы считаем, что все частицы находятся в основном состоянии энергетического спектра $E_{n_{z1},n_{z2},...,n_{zN}}$, так что $n_{z1} = n_{z2} = \cdots = n_{zN} = 1$. С учетом этого факта и того, что полученная энергия играет роль эффективной потенциальной энергии в уравнении Шредингера для медленной подсистемы, после подстановки $E_{n_{z1},n_{z2},...,n_{zN}}$ в волновое уравнение получаем:

$$\left(\sum_{i=1}^{N} \left[\frac{\hat{P}_{xi}^{2}}{2\mu} + \frac{\mu\Omega_{a}^{2}(1)}{2}x_{i}^{2}\right] + \sum_{i=1}^{N} \left[\frac{\hat{P}_{yi}^{2}}{2\mu} + \frac{\mu\Omega_{b}^{2}(1)}{2}y_{i}^{2}\right]\right) \psi_{s}(x_{1},...,x_{N},y_{1},...,y_{N}) \\
= \left(E - N\frac{\pi^{2}\hbar^{2}}{8\mu c^{2}}\right) \psi_{s}(x_{1},...,x_{N},y_{1},...,y_{N}) \equiv \mathcal{E}\psi_{s}(x_{1},...,x_{N},y_{1},...,y_{N}).$$
(10)

Из уравнения (10) следует, что двумерный гамильтониан системы может быть представлен в виде суммы гамильтонианов:

$$\hat{H}(x_1,...,x_N,y_1,...,y_N) = \hat{H}_1(x_1,...,x_N) + \hat{H}_2(y_1,...,y_N).$$
(11)

Таким образом, приходим к задаче двумерного асимметричного осциллятора в плоскости *XOY*. Решение этой проблемы известно, и *N*-частичный спектр будет иметь следующий вид [11]:

$$\mathcal{E}_{n_x,n_y} = \hbar \Omega_a(1) \sum_{i=1}^N \left(n_{xi} + \frac{1}{2} \right) + \hbar \Omega_b(1) \sum_{i=1}^N \left(n_{yi} + \frac{1}{2} \right), \tag{12}$$

где $n_{xi(yi)} = 0, 1, 2, ...$ квантовое число, характеризующее состояния частиц вдоль оси OX(OY).

Для изучения термодинамических характеристик данной системы в больцмановском приближении следует вычислить следующую статистическую сумму [2]:

$$Z(N) = \frac{1}{N!} \sum_{n_x, n_y} e^{-\beta E_{n_{xi}, n_{yi}}},$$
(13)

где $\beta = 1 / k_B T$. После подстановки выражении энергии $E_{n_{xi}, n_{yi}, n_{zi}}$ в Z(N) находим

$$Z(N) = \frac{1}{N!} \times \exp\left(-\beta \frac{\pi^2 \hbar^2}{8\mu c^2} N\right) \times \left\{\sum_{n_x} \exp\left(-\beta \hbar \Omega_a(1) \sum_{i=1}^N \left(n_{xi} + \frac{1}{2}\right)\right)\right\}$$

$$\times \left\{\sum_{n_y} \exp\left(-\beta \hbar \Omega_b(1) \sum_{i=1}^N \left(n_{yi} + \frac{1}{2}\right)\right)\right\}.$$
(14)

Поскольку система состоит из N тождественных частиц, то сумма внутри экспоненты дает произведение числа частиц N с выражением в скобке. Учитывая это, можем написать:

$$Z(N) = \frac{1}{N!} \times \exp\left(-\beta \frac{\pi^2 \hbar^2}{8\mu c^2} N\right) \times \left[\sum_{n_x} \exp\left(-\beta \hbar \Omega_a(1) \left(n_x + \frac{1}{2}\right)\right)\right]^N \times \left[\sum_{n_y} \exp\left(-\beta \hbar \Omega_b(1) \left(n_y + \frac{1}{2}\right)\right)\right]^N.$$
(15)

Выражения под знаками сумм являются бесконечно убывающими геометрическими прогрессиями, что позволяет вычислить эти суммы аналитически. В результате для Z(N) получим:

$$Z(N) = \frac{1}{4^{N} N!} \times \exp\left(\frac{-\beta \pi^{2} \hbar^{2} N}{8 \mu c^{2}}\right) \times \left[\operatorname{csch}\left\{\frac{\beta \hbar \Omega_{a}}{2}\right\} \times \operatorname{csch}\left\{\frac{\beta \hbar \Omega_{b}}{2}\right\}\right]^{N}.$$
 (16)

На основе выражения (16) можно вычислить термодинамические характеристики изучаемого газа – среднюю энергию $\langle E \rangle$, энтропию *S*, а также теплоёмкость C_V :

$$\langle E \rangle = -\frac{\partial \ln Z}{\partial \beta}, \qquad S = -\frac{\partial F}{\partial T}, \qquad C_V = \frac{\partial \langle E \rangle}{\partial T}.$$
 (17)

После вычислений для вышеуказанных параметров получаются следующие аналитические соотношения:

$$\langle E \rangle = \frac{\pi^2 \hbar^2}{8\mu c^2} N + \frac{N\hbar}{2} \left[\Omega_a \coth\left(\frac{\beta\hbar\Omega_a}{2}\right) + \Omega_b \coth\left(\frac{\beta\hbar\Omega_b}{2}\right) \right], \tag{18}$$

$$S = kN \ln \left[\left(\frac{4\sqrt[N]}{4\sqrt[N]} \operatorname{csch} \left\{ \frac{1}{2} \right\} \times \operatorname{csch} \left\{ \frac{1}{2} \right\} \right]$$

$$(19)$$

$$-\frac{\beta\hbar}{2} \left(\Omega_{a} \operatorname{coth} \left[\frac{\beta\hbar\Omega_{a}}{2} \right] + \Omega_{b} \operatorname{coth} \left[\frac{\beta\hbar\Omega_{b}}{2} \right] \right) \right],$$

$$C_{V} = Nk \left(\frac{\beta\hbar}{2} \right)^{2} \left[\Omega_{a}^{2} \operatorname{csch}^{2} \left(\frac{\beta\hbar\Omega_{a}}{2} \right) + \Omega_{b}^{2} \operatorname{csch}^{2} \left(\frac{\beta\hbar\Omega_{b}}{2} \right) \right].$$
(20)

3. Обсуждение результатов

Полученные выражения (18)–(20) позволяют детально изучить зависимости вышеприведенных термодинамических параметров от температуры и геометрических размеров изучаемой КТ при различных значениях числа частиц N. Расчеты будем проводить для КТ InAs, в котором $\mu = 0.026m_0 - эффективная масса электрона. Геометрические значения параметров <math>a,b$ и c для КТ в направлениях OX, OY и OZ равны $5a_B$, $7a_B$ и $1a_B$, соответственно. На рис.2а представлена зависимость средней энергии $\langle E \rangle$ от температуры газа T в интервале от 100 до



Рис.2. Зависимость средней энергии $\langle E \rangle$ от (а) температуры T и (b) от значений полуоси c в направлении OZ, при постоянной температуре T = 300K, и при фиксированных значениях полуосей $a = 5a_B$, $b = 7a_B$ в направлении OX и OY, соответственно, для случаев числа частиц в системе: I - N = 4, 2 - N = 6 и 3 - N = 8.

300 К. Значение $\langle E \rangle$ увеличивается с ростом температуры T. Это объясняется тем, что в случае невзаимодействующего электронного газа средняя энергия (внутренняя энергия) определяется только средней кинетической энергией движения частиц, которая, в свою очередь, зависит от температуры T и с её ростом увеличивается. При этом, как и следовало ожидать, рост числа частиц N в системе приводит к увеличению средней энергии всей системы, что является следствием прямой пропорциональности средней кинетической энергии системы числу частиц N.

На рис.2b показана зависимость средней энергии от полуоси c в пределах изменения от $0.6a_B$ до $2a_B$. Увеличение размера КТ в аксиальном направлении приводит к ослаблению размерного квантования и уменьшению аксиальной энергии, результатом чего является уменьшение значений средней энергии системы.

Рис.3а, в представляют зависимости энтропии системы S от температуры T при постоянных геометрических параметрах КТ, а также от полуоси c при постоянной температуре T = 300 К. Как показано на рис.3а, с увеличением температуры энтропия растет, что является следствием повышения степени



Рис.3. Зависимость энтропии системы S от (а) температуры T и (b) от значений полуоси c в направлении OZ при постоянной температуре T = 300К и при фиксированных значениях полуосей $a = 5a_B$, $b = 7a_B$ в направлении OX и OY, соответственно, для случаев числа частиц в системе: 1 - N = 4, 2 - N = 6 и 3 - N = 8.

неупорядоченности в системе, причем увеличение числа частиц также приводит к росту хаоса в системе. Увеличение размера КТ (рис.3b) в направлении *OZ* приводит к сближению энергетических уровней (из-за ослабления размерного квантования), вследствие чего вероятность переходов частиц между разными уровнями растёт, тем самым увеличивая энтропию системы.

На рис.4а, b показаны зависимости теплоёмкости системы C_V от температуры T и полуоси a KT. Из рис.4а видно, что изменение температуры не влияет на теплоёмкость. Это можно объяснить тем, что в случае идеального газа теплоёмкость системы не зависит от температуры, так как определяется соотношением $C_V = \partial \langle E \rangle / \partial T$. Ввиду того, что зависимость $\langle E(T) \rangle$ близка к линейной, C_V практически не меняется. С другой стороны, C_V прямо пропорциональна числу частиц N и для её увеличения на единицу температуры нужно больше энергии. Этим и объясняется увеличение значения C_V с ростом числа частиц. Рис.4b показывает, что на увеличение геометрического размера КТ в направлении оси OXтеплоёмкость системы также реагирует слабо.



Рис.4. Зависимость теплоёмкости системы C_V от (а) температуры T и (b) от значения полуоси a в направлении OX при постоянной температуре T = 300К и при фиксированных значениях полуосей $b = 7a_B$, $c = 1a_B$, в направлении OY и OZ, соответственно, для случаев числа частиц в системе: 1 - N = 4, 2 - N = 6 и 3 - N = 8.

Средняя энергия и энтропия невзаимодействующего электронного газа с ростом температуры увеличиваются, в то время как теплоёмкость газа практически не меняется. С другой стороны, рост геометрических размеров КТ приводит к увеличению энтропии системы и к уменьшению средней энергии. При этом теплоёмкость газа, как и в первом случае, остается неизменной.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. L.F.C. Pereira, E.O. Silva. Quantum Reports, 6, 664 (2024).
- H.Ts. Ghaltaghchyan, D.B. Hayrapetyan, E.M. Kazaryan, H.A. Sarkisyan. Micro and Nanostructures, 174, 207471 (2023).
- 3. R. Khordad, B. Mirhosseini, M.M. Mirhosseini. J. Low Temp. Phys., 197, 95 (2019).
- 4. F.S. Nammas. Phys. A: Stat. Mech. Appl., 508, 187 (2018).
- 5. M.A. Mkrtchyan, Y.S. Mamasakhlisov, D.B. Hayrapetyan, S. Baskoutas, H.A. Sarkisyan.

Heliyon, 10, e34762 (2024).

- 6. A.A. Nahapetyan, M.A. Mkrtchyan, Y.Sh. Mamasakhlisov, M.Ya. Vinnichenko, D.A. Firsov, H.A. Sarkisyan. NIMA, 1073, 170251 (2025).
- 7. A.M. Babanli, M. Balci, V. Sabyrov, R. Saparguliyev, Sh. Shamuhammedov, A. Kakalyyev. J. Low Temp. Phys., 217, 584 (2024).
- 8. B. Boyacioglu, A. Chatterjee. Physica E, 44, 1826 (2012).
- 9. M. Grundmann, O. Stier, D. Bimberg. Phys. Rev. B, 52, 11969 (1995).
- 10. R. Khordad, H. Bahramiyan. Eur. Phys. J. Appl. Phys., 67, 20402 (2014).
- В.М. Галицкий, Б.М. Карнаков, В.И. Коган. Задачи по квантовой механике. Наука, Москва, 1992.
- D.B. Hayrapetyan, E.M. Kazaryan, H.A. Sarkisyan. Phys. E: Low-Dim. Syst. Nanostr., 75, 353 (2016).
- H.A. Sarkisyan, D.B. Hayrapetyan, L.S. Petrosyan, E.M. Kazaryan, A.N. Sofronov, R.M. Balagula, D.A. Firsov, L.E. Vorobjev, A.A. Tonkikh. Nanomaterials, 9, 56 (2019).

ՉՓՈԽԱԶԴՈՂ ԷԼԵԿՏՐՈՆԱՅԻՆ ԳԱԶԻ ՋԵՐՄԱԴԻՆԱՄԻԿԱՆ ՈՒԺԵՂ ՍԵՂՄՎԱԾ ԱՆՀԱՄԱՉԱՓ ԷԼԻՊՍԱՐԴԱՅԻՆ InAs ՔՎԱՆՏԱՅԻՆ ԿԵՏՈՒՄ

Ա.Ա. ՆԱՀԱՊԵՏՅԱՆ

Ուսումնասիրվել են չփոխազդող էլեկտրոնային գազի ջերմադինամիկական բնութագրերը ուժեղ սեղմված անհամաչափ էլիպսարդային InAs քվանտային կետում։ Բոլցմանյան մոտավորությամբ ստացվել են համակարգի էներգիական սպեկտրը և վիձակագրական գումարը։ Ներկայացվել են համակարգի միջին էներգիայի, էնտրոպիայի և ջերմունակության անալիտիկ արտահայտությունները։ Հետազոտվել են թվարկված ջերմադինամիկական բնութագրերի կախումները ջերմաստիձանից և քվանտային կետի երկրաչափական պարամետրերից։

NON-INTERACTING ELECTRON GAS THERMODYNAMICS IN THE STRONGLY OBLATE ASYMMETRIC ELLIPSOIDAL InAs QUANTUM DOT

A.A. NAHAPETYAN

The thermodynamic characteristics of a non-interacting electron gas in a strongly oblate asymmetric ellipsoidal quantum dot of InAs have been investigated. The analytical expressions for the energy spectrum and partition function of the system in the Boltzmann approximation are obtained. For given system analytical expressions for the average energy, entropy, and heat capacity of the system are presented. The dependences of the listed thermodynamic characteristics on the temperature and geometric parameters of the quantum dot have been studied. Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.79–89 (2025) УДК 536.2 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-79

НАНОРАЗМЕРНЫЙ ТЕРМОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ОДНОФОТОННЫЙ ДЕТЕКТОР

А.А. КУЗАНЯН, А.С. КУЗАНЯН^{*}, В.Р. НИКОГОСЯН, Л.Г. МГЕРЯН, В.Т. ТАТОЯН, В.С. КУЗАНЯН, Г.Р. БАДАЛЯН

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: akuzanyan@yahoo.com

(Поступила в редакцию 17 января 2025 г.)

Рассмотрены особенности распространения тепла, выделенного одиночным фотоном в термоэлектрическом датчике с площадью поверхности 0.25 мкм² состоящем из последовательно расположенных друг на друге диэлектрической подложки (Al₂O₃), теплоотвода (Mo), термоэлектрического слоя (La_{0.99}Ce_{0.01}B₆), и поглотителя (W). Представлены результаты моделирования процессов распространения тепла в датчике с рабочей температурой 0.5, 0.8, 1, 1.2 и 1.5 К при поглощении фотонов с энергией 0.8 и 1.65 эВ. Рассчитана эквивалентная мощность джонсоновского и фононного шума. Определены мощность возникающего на датчике сигнала и отношение сигнал/шум. Проведено сравнение с характеристиками датчике такой же конструкции с площадью поверхности 1 мкм². Расчеты проводились трехмерным матричным методом, основанным на уравнении распространения тепла из ограниченного объема. Показано, что уменьшение площади поверхности датчика приводит к увеличению отношения сигнал/шум и, следовательно, к увеличению эффективности регистрации уже поглощенного фотона. Этот результат особенно важен для однофотонного детектирования в ближней инфракрасной области.

1. Введение

Данная работа продолжает наши исследования по разработке термоэлектрического однофотонного детектора (TSPD) для использования в таких областях, как квантовая электроника, спектроскопия, астрономия, квантовые вычисления, телекоммуникация, биология, безопасность, медицина, метрология и визуализация [1–3]. В дополнение к этим приложениям, бесконтактное измерение изменений температуры является существенной проблемой для широкого спектра современных приложений со слабым тепловым излучением. Например, прямое наблюдение за локальным рассеянием энергии в интегральных схемах [4–6] и квантовых устройствах [7]. Кроме того, дистанционный мониторинг изменений температуры океана имеет решающее значение для улучшения климатических моделей [8, 9].

Оптическое волокно связывает компоненты в оптической системе как проводящие кабели в электрической системе [10–12]. Оптические волокна используются для передачи информации между устройствами со сверхнизкими потерями [13]. Последние достижения показывают, что оптические волокна также могут использоваться в качестве материала подложки для прямой интеграции с различными нанооптическими устройствами, в частности с однофотонными детекторами [14, 15]. Это используется в таких областях, как зондирование, визуализация, квантовые информационные технологии [16–19].

Для большинства перечисленных применений однофотонных детекторов, помимо их высоких характеристик, положительным фактором являются их малые геометрические размеры. В предыдущих исследованиях нами рассматривались различные конструкции термоэлектрических датчиков с различной геометрией и с использованием различных материалов [20–24]. Наши недавние исследования показали, что отношение сигнал/шум (SNR) термоэлектрического датчика может быть существенно больше единицы для фотонов в ультрафиолетовой и ближней инфракрасной областях электромагнитного спектра [25, 26]. Целью настоящей работы является исследование характеристик термоэлектрического датчика с площадью поверхности 0.25 мкм² при изменении рабочей температуры в диапазоне 0.5–1.5 К.

2. Методы исследований

Исследуется многослойный термоэлектрический датчик, состоящий из вольфрамового поглотителя с толщиной 15 нм, термоэлектрика La_{0.99}Ce_{0.01}B₆ (10 нм) и молибденового теплоотвода (10 нм). Датчик имеет квадратную поверхность с площадью A = 0.25 мкм² и располагается на сапфировой подложке толщиной 100 нм. Компьютерное моделирование процессов распространения тепла в термоэлектрическом сенсоре проводилось на основе уравнения теплопередачи из ограниченного объема с использованием подробно описанной в работе [26] методики. Изучены временные зависимости температуры в зоне термализации, в центре границ всех слоев, в 10 точках на каждой границе с шагом 50 нм от центра. Процессы распространения тепла рассматриваются после поглощения одиночных фотонов с энергией (*E*), равной 0.8 и 1.65 эВ в центре поверхности поглотителя при рабочей температуре (*T*₀), принимающей значения 0.5, 0.8, 1, 1.2 и 1.5 К. Численные значения использованных в расчетах параметров приведены в табл.1.

Используя полученные временные зависимости температуры выбранных областей датчика, определялись время выравнивания температуры на всей поверхности слоя t_e , температура, при которой произошло выравнивание T_e и разность температур $\Delta T_e = T_e - T_o$, а также параметры временной зависимости разности усредненной температуры на границах термоэлектрического слоя: максимальная температура T_m , время достижения максимума t_m , разность температур $\Delta T_m = T_m - T_o$, время (t_b) спада температуры до уровня фона (δ). Параметр 1/ t_b является полосой частот измерений (Δf) и может рассматриваться также как скорость счета детектора.

3. Результаты

3.1. Эквивалентная мощность шума

Эквивалентная мощность шума датчика WLCM определялась по ранее полученным [26] формулам для Джонсоновского шума

$$NEP_{J}^{2} = 4k_{B}T(\rho_{1}d_{1} + \rho_{2}d_{2})(4A\varepsilon\sigma_{SB}T^{3} + k_{1}d_{1} + k_{2}d_{2})^{2}/A|S|^{2},$$

Π	Материалы								
Параметры	(La, Ce)B ₆	W	Мо	Al ₂ O ₃					
Плотность, кг/м ³	4720	19300	10280	4000					
0.5 K									
Теплоемкость, Дж/(кг К)	0.196 [27]	0.0028 [29]	1.1× 10 ⁻² [32]	1×10 ⁻³ [33]					
Теплопроводность, Вт/(м К)	0.35 [27]	720 [30]	25 [32]	0.7 [34]					
Коэффициент Зеебека, мкВ/К	90 [27]								
Удельное сопротивление, Ом м	3×10 ⁻⁸ [28]	1.54×10 ⁻¹³ [31]	7×10 ⁻¹² [31]						
	0.8 1	K							
Теплоемкость, Дж/(кг К)	0.16 [27]	0.0045 [29]	1.5×10 ⁻² [32]	1.6×10 ⁻³ [33]					
Теплопроводность, Вт/(м К)	0.7 [27]	1150 [30]	40 [32]	2.6 [34]					
Коэффициент Зеебека, мкВ/К	100.5 [27]								
Удельное сопротивление, Ом м	2.6×10 ⁻⁸ [28]	1.56×10 ⁻¹³ [31]	7×10 ⁻¹² [31]						
	1 K								
Теплоемкость, Дж/(кг К)	0.13 [27]	0.0057 [29]	1.9×10 ⁻² [32]	2×10 ⁻³ [33]					
Теплопроводность, Вт/(м К)	1.1 [27]	1440 [30]	50 [32]	4.9 [34]					
Коэффициент Зеебека, мкВ/К	103 [27]								
Удельное сопротивление, Ом м	2×10 ⁻⁸ [28]	1.57×10 ⁻¹³ [31]	7×10 ⁻¹² [31]						
	1.2 I	K							
Теплоемкость, Дж/(кг К)	0.11 [27]	0.0068 [29]	2.4×10 ⁻² [32]	2.4×10 ⁻³ [33]					
Теплопроводность, Вт/(м К)	1.5 [27]	1730 [30]	60 [32]	8.3 [34]					
Коэффициент Зеебека, мкВ/К	104 [27]								
Удельное сопротивление, Ом м	1.9×10 ⁻⁸ [28]	1.58×10 ⁻¹³ [31]	7×10 ⁻¹² [31]						
1.5 K									
Теплоемкость, Дж/(кг К)	0.11 [27]	0.0085 [29]	2.8×10 ⁻² [32]	3×10 ⁻³ [33]					
Теплопроводность, Вт/(м К)	2.3 [27]	2160 [30]	75 [32]	15.5 [34]					
Коэффициент Зеебека, мкВ/К	103 [27]								
Удельное сопротивление, Ом м	1.8×10 ⁻⁸ [28]	1.6×10 ⁻¹³ [31]	7×10 ⁻¹² [31]						

Габл.1. Физические	параметры	материалов
--------------------	-----------	------------

фононного шума

$$NEP_p^2 = 4k_BT^2(4A\varepsilon\sigma_{SB}T^3 + k_3d_3),$$

и суммарного шума

$$NEP^2 = NEP_P^2 + NEP_J^2$$
.

В этих уравнениях $k_{\rm B}$ – постоянная Больцмана, T – рабочая температура, A – площадь поверхности датчика, ε — поглощательная способность поглотителя (мы приняли ее равной 1), $\sigma_{\rm SB}$ – постоянная Стефана–Больцмана, S – коэффициент Зеебека термоэлектрического слоя, ρ_1 , d_1 , k_1 обозначают удельное сопротивление, толщина и теплопроводность поглотителя, ρ_2 , d_2 , k_2 и d_3 , k_3 те же параметры для термоэлектрического слоя и теплоотвода. Данные эквивалентной мощности шума датчика WLCM с площадью поверхности A, равной 1 и 0.25 мкм² при различных рабочих температурах приведены в табл. 2.

	NEP _P	NEP _J	NEP	NEP _P	NEP _J	NEP		
$T_{\rm o},{ m K}$	фВт/Гц ^{1/2}							
		1 мкм ²		0.25 мкм ²				
0.5	1.857	10.92	11.07	1.857	21.84	21.92		
0.8	3.757	18.39	18.77	3.757	36.79	36.99		
1	5.253	22.04	22.66	5.253	44.09	44.4		
1.2	6.906	28.17	29.0	6.906	56.34	56.76		
1.5	9.643	38.43	39.62	9.643	76.86	77.46		

Табл.2. Эквивалентная мощность шума датчика с поверхностью 1 и 0.25 мкм²

Можно видеть, что фононный шум одинаков для двух значений площади поверхности датчика, Джонсоновский шум в 2 раза больше у сенсора с поверхностью 0.25 мкм², намного больше фононного, и он определяет суммарный шум, который вместе с обеими составляющими, возрастает с увеличением рабочей температуры.

3.2. Моделирование процессов распространения тепла в датчике WLCM после поглощения фотонов с энергией 1.65 и 0.8 эВ

Основные закономерности распространения тепла в термоэлектрическом датчике WLCM с площадью 0.25 мкм² после поглощения одиночного фотона аналогичны установленным ранее для многослойных датчиков других конструкций, одинаковы для поверхностей всех слоев датчика, для различных энергий фотонов и рабочих температур. В качестве примера на рис.1 приведены графики временной зависимости температуры в центре поверхности термоэлектрического слоя и в 5 точках от центра с шагом 50 нм после поглощения фотона с энергией 0.8 эВ в центре поверхности поглотителя при рабочей температуре датчика 1 К.



Рис.1. Временная зависимость температуры на поверхности термоэлектрического слоя La_{0.99}Ce_{0.01}B₆ после поглощения фотонов с энергией 0.8 эВ при рабочей температуре 1 К в датчике с поверхностью 0.25 мкм² (на расстоянии от центра слоя: 1 - 0, 2 - 50, 3 - 100, 4 - 150, 5 - 200 и 6 - 250 нм).

Можно видеть, что максимум зависимости T(t) в различных точках поверхности достигается очень быстро, а после максимума температура медленно спадает до рабочей температуры. Наиболее высокая температура достигается в центре. При удалении от центра значения максимума уменьшаются, а время достижения максимума увеличивается. Отметим также, что чем дальше расположена поверхность от поглотителя, тем меньшая температура на нем достигается.

Как видно из рис.1, спустя некоторое время после начала процесса распространения тепла в термоэлектрическом датчике температура выравнивается по всей поверхности слоев. Три параметра характеризуют этот процесс: время (t_e), когда отличие температур на разных участках поверхности слоя становится меньше определенного значения (ξ), абсолютная температура (T_e), при которой это происходит и разность температур $\Delta T_e = T_e - T_o$. Очевидно, что значения этих параметров зависят от величины ξ . Чем меньшее ξ , тем позже и при более низкой температуре достигается выравнивание. Рассмотрим подробно параметры t_e и ΔT_e для значения $\xi = 0.1$ мК. Зависимость параметра t_e от рабочей температуры показана на рис.2.



Рис.2. Зависимость параметра t_e от рабочей температуры при поглощении фотонов с энергией 1.65 eV (*1*–4) и 0.8 eV (*5*–8) в датчике с поверхностью 0.25 мкм² (поверхность слоев: *1*, *5* – поглотитель, *2*, *6* – термоэлектрик, *3*, *7* – теплоотвод и *4*, *8* – подложка).

Можно видеть, что параметр t_e уменьшается с увеличением рабочей температуры датчика почти во всех рассмотренных случаях. Исключением являются значения t_e поверхности поглотителя и термоэлектрического слоя для фотонов с энергией 0.8 эВ, которые с увеличением T_o сначала слегка возрастают, и начинают убывать при $T_o > 0.8$ К. При низких рабочих температурах выравнивание температуры на поверхности поглотителя и термоэлектрического слоя происходит быстрее, чем на поверхности теплоотвода и подложки. При $T_o > 1$ К картина обратная. Для всех рассмотренных случаев, поглощению фотона с меньшей энергией соответствует меньшее значение параметра t_e . Отметим, что при $T_o < 1$ К значительно отличаются численные значения параметра t_e поверхности поглотителя и термоэлектрического поглотителя и термоэлектрического слоя для датчиков с разной площадью поверхности. При A = 0.25 мкм² параметр t_e значительно меньше, чем при A = 1 мкм². Из-за большой теплопроводности вольфрама температура на обеих границах поглотителя выравнивается до очень близкой температуры за практически одинаковое время. Эта закономерность выполняется для всех рассмотренных случаев.

Зависимость параметра ΔT_e от рабочей температуры приведена на рис.3. Можно видеть, что ΔT_e уменьшается с увеличением рабочей температуры и при одной и той же рабочей температуре больше в случае поглощения фотона с большей энергией в датчике с меньшей площадью поверхности.



Рис.3. Зависимость параметра ΔT_e поверхности термоэлектрического слоя от рабочей температуры датчика (1, 2 – A = 0.25 и 3, 4 – A = 1мкм²; 1, 3 – E = 1.65 и 2, 4 – E = 0.8 эВ).

Для расчета параметров датчика нужно рассматривать усредненную температуру поверхности слоев сенсора, градиента усредненной температуры на термоэлектрическом слое. В табл.3 приведены максимальная разность усредненной температуры на границах термоэлектрического слоя датчика WLCM ($\Delta T_{\rm m}$), время достижения максимума зависимости $\Delta T(t)$, время ($t_{\rm b}$) спада до уровня фона $T_{\rm o} + \delta$ (ниже, если специально не оговаривается, $\delta = 0.1$ мК) и значения полосы частот Δf , в которой рассматривается сигнал сенсора.

Можно видеть, что параметр $\Delta T_{\rm m}$ уменьшается с увеличением рабочей температуры и больше для энергии фотона 1.65 эВ и площади поверхности датчика 0.25 мкм². Отметим, что значение параметра $\Delta T_{\rm m}$, обусловленное поглощением фотонов с энергией 0.8 эВ в датчике с поверхностью 0.25 мкм², при всех рабочих

	<i>E</i> = 1.65 эВ				$E = 0.8 \mathfrak{B}$				FWHM,	
Τ₀,	$\Delta T_{\rm m}$,	t _m ,	t _b ,	Δf ,	$\Delta T_{\rm m}$,	t _m ,	t _b ,	Δf,	фс	
К	К	фс	пс	ΤГц	К	фс	пс	ΤГц		
	$A = 0.25 \text{ MKm}^2$									
0.5	1.428	0.0246	4.88	0.21	0.692	0.0246	4.46	0.22	296	
0.8	0.888	0.0228	1.95	0.51	0.431	0.0228	1.79	0.56	121	
1	0.701	0.0219	0.99	1.01	0.340	0.0219	0.91	1.10	62	
1.2	0.587	0.0206	0.60	1.66	0.285	0.0206	0.55	1.81	38	
1.5	0.469	0.0192	0.39	2.59	0.228	0.0192	0.35	2.84	25	
	$A = 1 \text{ MKm}^2$									
0.5	0.375	0.0345	4.68	0.21	0.182	0.0345	4.27	0.24	354	
0.8	0.233	0.0318	1.80	0.56	0.113	0.0318	1.63	0.61	145	
1	0.184	0.0300	0.91	1.10	0.089	0.0300	0.82	1.22	74	
1.2	0.154	0.0282	0.55	1.81	0.075	0.0282	0.50	2.01	46	
1.5	0.123	0.0267	0.35	2.85	0.060	0.0267	0.32	3.18	30	

Табл.3. Параметры временной зависимости градиента усредненной температуры на границах термоэлектрического слоя датчика WLCM с площадью поверхности 1 и 0.25 мкм² при поглощении фотонов с энергией 1.65 и 0.8 эВ

температурах больше значений этого параметра при поглощении фотонов с энергией 1.65 эВ в датчике с поверхностью 1 мкм². Наибольшему (0.7 К) и наименьшему (0.09К) значению градиента $\Delta T_{\rm m}$, которые мы наблюдаем при рабочей температуре 1 К (коэффициент Зеебека термоэлектрического слоя 103 мкВ/К, соответствует напряжение 72.1 и 9.3 мкВ. Сигналы такого уровня могут регистрироваться без дополнительного усиления.

Из таблицы видно, что максимум зависимости $\Delta T(t)$ достигается очень быстро. Параметр t_m не зависит от энергии фотона, уменьшается с увеличением рабочей температуры и при той же рабочей температуре больше для датчика с большей площадью поверхности. Общим для всех рассмотренных случаев моделирования является то, что с увеличением рабочей температуры параметр $t_{\rm b}$ убывает, а Δf возрастает. Можно видеть, что при одной и той же рабочей температуре меньшим энергиям фотона при одинаковой площади поверхности датчика и большей площади датчика при одинаковой энергии фотона соответствуют меньшие значения параметра t_b и более высокие значения Δf . Важным временным параметром является ширина на полувысоте (FWHM) зависимости $\Delta T(t)$. Результаты моделирования показывают, что этот параметр изменяется с изменением рабочей температуры и не зависит от энергии поглощенного фотона, несмотря на значительную разницу в значениях $\Delta T_{\rm m}$. Значения FWHM приведены в последнем столбце табл.3. Параметр FWHM уменьшается с увеличением рабочей температуры и больше для датчика с большей поверхностью при всех рабочих температурах.

3.3. Расчет мощности сигнала, эквивалентного шума и отношения сигнал/шум

Рассмотрим параметры датчика WLCM для случая поглощения фотонов с энергией 1.65 и 0.8 эВ. Возможность регистрации электрического сигнала определяется отношением сигнала к шуму и задается уравнением SNR = P_S/P_N , где P_S и P_N – мощности сигнала и шума, которые измерены в одной и той же полосе частот регистрирующей системы. Мощность шума определяется уравнением $P_N = NEP \times \Delta f^{4/2}$. Мгновенная мощность электрического сигнала системы составляет $P(t) = V^2/R$, где V – электрическое напряжение, возникающее в системе с сопротивлением R. Средняя за период τ активная мощность $P = \frac{1}{\tau} \int_0^{\tau} P(t) dt$. Мгновенное напряжение на сенсоре равно произведению коэффициента Зеебека термоэлектрического слоя на разность усредненной температуры на его границах. Разделив интеграл мгновенной мощности на время интегрирования сигнала, которое в нашем случае является временем спада сигнала до фонового значения, получим мощность сигнала P_S .

На рис.4–6 приведены данные зависимости от рабочей температуры параметров P_N , P_S и SNR для уровня фона $\delta = 0.1$ мК. Можно видеть, что с увеличением T_o мощность шума возрастает, мощность сигнала убывает, следовательно, убывает и отношение сигнала к шуму. При фиксированом значении T_o мощность шума больше у датчика с меньшей площадью поверхности и при поглощении фотона с меньшей энергией, однако зависимость P_N от энергии фотона слабая.

При фиксированной рабочей температуре мощность сигнала больше у датчика с меньшей площадью поверхности и при поглощении фотона с большей энергией. Данная закономерность выполняется и для отношения сигнал/шум. Значения SNR больше двух, что можно считать критерием эффективной



Рис.4. Зависимость мощности шума от рабочей температуры: 1, 2 - A = 1 и 3, 4 - A = 0.25 мкм²; 1, 3 - E = 1.65 и 2, 4 - E = 0.8 эВ.



Рис.5. Зависимость мощности сигнала от рабочей температуры: 1, 2 - A = 1 и 3, 4 - A = 0.25 мкм²; 1, 3 - E = 1.65 и 2, 4 - E = 0.8 эВ.

регистрации уже поглощенного фотона, реализуются при $T_o < 1$. Максимальные значения SNR достигаются при $T_o = 0.5$ К. Даже для низкоэнергетичных фотонов ближнего ИК диапазона SNR > 10 для сенсора с поверхностью 0.25 мкм².

Полученные при $\delta = 0.1$ мК закономерности для параметров P_N , P_S и SNR сохраняются при спаде сигнала до уровня $\delta = 1$ мК и при рассмотрении сигнала с продолжительностью, определяемой параметром FWHM. Численные значения отнешения сигнал/шум для датчика споверхностью 0.25 мкм² представлены в табл.4. Можно видеть, что с увеличением δ значения параметра SNR термоэлектрического датчика увеличиваются. При рассмотрении согнала за промежуток времени, который соответствует ширине сигнала на полувысоте, получены значения SNR > 1 при всех рассмотренных рабочих температурах в случае поглощения фотона в ближней ИК области в сенсоре WLCM с повехностью 0.25 мкм².

4. Заключение

В работе рассмотрены особенности распространения тепла, выделенного одиночным фотоном в термоэлектрическом датчике с квадратной поверхностью 0.25 мкм², состоящем из последовательно расположенных друг на друге диэлектрической подложки (Al₂O₃), теплоотвода (Mo), термоэлектрического слоя



Рис.6. Зависимость отношения сигнал/шум от рабочей температуры: l, 2 - A = 1 и 3, 4 - A = 0.25 мкм²; l, 3 - E = 1.65 и 2, 4 - E = 0.8 эВ.

	1	E = 1.65 эВ		$E = 0.8 \ \mathrm{sB}$				
<i>Τ</i> ₀, К	SNR							
	δ=0.1 мК	δ = 1 мК	FWHM	δ=0.1 мК	δ = 1 мК	FWHM		
0.5	46.46	60.6	163	13.17	17.2	38.2		
0.8	12.67	14.7	34.3	3.11	3.66	10.8		
1	6.44	7.51	17.3	1.58	1.87	5.8		
1.2	3.00	3.58	8.2	0.78	0.93	2.9		
1.5	1.18	1.39	3.1	0.29	0.35	1.1		

Табл.4. Значения параметра SNR датчика WLCM с площадью поверхности 0.25 мкм²

(La_{0.99}Ce_{0.01}B₆), и поглотителя (W).

Получены результаты моделирования процессов распространения тепла в датчике с рабочей температурой 0.5, 0.8, 1, 1.2, и 1.5 К при поглощении фотонов с энергией 0.8 и 1.65 эв. Рассчитана эквивалентная мощность джонсоновского и фононного шума. Определена мощность возникающего на датчике сигнала и отношения сигнал/шум. Проведено сравнение с характеристиками датчика с площадью поверхности 1 мкм².

Основным полученным результатом является то, что уменьшение площади поверхности датчика приводит к увеличению отношения сигнал/шум, следовательно, увеличению эффективности регистрации уже поглощенного фотона. Этот результат особенно важен для однофотонного детектирования в ближней ИК области.

Для многих применений однофотонных детекторов важным параметром является системная эффективность определяемая отношением числа достигших датчик фотонов к числу зарегистрированных. И здесь, кроме эффективности регистрации поглощенных фотонов, эффективности поглощения фотонов, необходимо учитывать эффективность оптической связи фотонов с датчиком. Коэффициент отражения вольфрама в ближней ИК области высокий. Следовательно, только с антиотражающим покрытием датчик WLCM может обеспечить высокую системную эффективность.

Авторы благодарны А.М. Гуляну за интерес к работе и полезные дискуссии.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке PA в рамках научного проекта №24WS-1C016 «Разработка наноразмерного термоэлектрического однофотонного детектора с высокими характеристиками и широким спектральным диапазоном».

ЛИТЕРАТУРА

- H. Hao, QY. Zhao, YH. Huang, J. Deng, F. Yang, SY. Ru, Z. Liu, C. Wan, H. Liu, ZJ. Li, HB. Wang, XC. Tu, LB. Zhang, XQ. Jia, XL. Wu, J. Chen, L. Kang, PH. Wu. Light Sci Appl, 13, 25 (2024).
- 2. R. Hadfield. Nat. Photon., 3, 696 (2009).
- 3. D. Cornwell. Opt. Photonics N., 27, 24 (2016).
- 4. G. Tessier, M. Bardoux, C. Filloy, C. Boue, D. Fournier. Sensor Review, 27, 291 (2007).
- 5. M. Mecklenburg, W.A. Hubbard, E.R. White, R. Dhall, S.B. Cronin, S. Aloni, B.C. Regan. Science, 347, 629 (2015).
- H. Xue, R. Qian, W. Lu, X. Gong, L. Qin, Z. Zhong, Z. An, L. Chen, W. Lu. Nat Commun, 14, 3731 (2023).
- D. Halbertal, J. Cuppens, M. Ben Shalom, L. Embon, N. Shadmi, Y. Anahory, H.R. Naren, J. Sarkar, A. Uri, Y. Ronen, Y. Myasoedov, L.S. Levitov, E. Joselevich, A.K. Geim, E. Zeldov. Nature, 539, 407 (2016).
- 8. L. Caesar, S. Rahmstorf, A. Robinson, G. Feulner, V. Saba. Nature, 556, 191 (2018).
- 9. S.C. Riser, H.J. Freeland, D. Roemmich, S. Wijffels, A. Troisi, M. Belbéoch, D. Gilbert, J. Xu, S. Pouliquen, A. Thresher, P-Y. Le Traon, G. Maze, B. Klein, M. Ravichandran, F. Grant, P-M. Poulain, T. Suga, B. Lim, A. Sterl, P. Sutton, K.-A. Mork, P.J. Vélez-Belchí, I. Ansorge, B. King, J. Turton, M. Baringer, S.R. Jayne. Nat Clim Change, 6, 145 (2016).
- J. Arrazola, B. Brádler, K. Ville, T. Bromley, M. Collins, I. Dhand, A. Fumagalli, T. Gerrits, A. Goussev, L. Helt, J. Hundal, T. Isacsson, R. Israel, J. Izaac, S. Jahangiri, R. Janik, N. Killoran, S. Kumar, J. Lavoie, Y. Zhang. Nature, 591(7848), 54 (2021).
- M.K. Bhaskar, R. Riedinger, B. Machielse, D.S. Levonian, C.T. Nguyen, E.N. Knall, H. Park, D. Englund, M. Lončar, D.D. Sukachev, M.D. Lukin. Nature, 580 (7801), 60 (2020).
- A.W. Elshaari, W. Pernice, K. Srinivasan, O. Benson, V. Zwiller. Nat Photonics., 14, 285 (2020).
- D. Cozzolino, D. Bacco, B. Da Lio, K. Ingerslev, Y. Ding, K. Dalgaard, P. Kristensen, M. Galili, K. Rottwitt, S. Ramachandran, L.K. Oxenløwe. Phys Rev Appl., 11, 064058 (2019).
- 14. F. Galeotti, M. Pisco, A. Cusano. Nanoscale, 10, 22673 (2018).
- P. Vaiano, B. Carotenuto, M. Pisco, A. Ricciardi, G. Quero, M. Consales, A. Crescitelli, E. Esposito, A. Cusano. Laser Photonics Rev., 10, 922 (2016).
- M. Consales, G. Quero, S. Spaziani, M. Principe, A. Micco, V. Galdi, A. Cutolo, A. Cusano. Laser Photonics Rev., 14, 2000180 (2020).
- M. Plidschun, H. Ren, J. Kim, R. Forster, S.A. Maier, M.A. Schmidt. Light Sci Appl., 10, 57 (2021).
- 18. L. Zhang, H. Zhang, N. Tang, X. Chen, F. Liu, X. Sun, H. Yu, X. Sun, Q. Jia, B.

Chen, B. Cluzel, P. Grelu, A. Coillet, F. Qiu, L. Ying, W. E. I. Sha, X. Liu, J. Qiu, D. Zhao, W. Yan, D. Wu, X. Shen, J. Wang, M. Qiu. Light. Adv. Manuf., 3, 45 (2022).

- 19. Y. Dai, K. Jia, G. Zhu, H. Li, Y. Fei, Y. Gu, H. Yuan, H. Wang, X. Jia, Q. Zha, L. Kang, J. Chen, S-n. Zhu, P. Wu, Z. Xie, L. Zhang. PhotoniX, 4, 7 (2023).
- 20. A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan. IEEE Sens. J., 20, 3040 (2020).
- 21. A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan. IEEE Sens. J., 20, 12776 (2020).
- 22. A.A. Kuzanyan, A.S. Kuzanyan, V.R Nikoghosyan, S.R. Harutyunyan. J. Contemp. Phys., 57, 580 (2022).
- 23. A.A. Kuzanyan, A.S. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, V.T. Tatoyan, V.S. Kuzanyan, S.R. Harutyunyan, G.Ts. Kharatyan, G.R. Badalyan. J. Contemp. Phys., 58, 155 (2023).
- 24. A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan.
- 25. A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan. Opt. Eng., 63, 067102 (2024). Opt. Eng., 63, 017105 (2024).
- A. Kuzanyan, V. Nikoghosyan, A. Davoyan, A.S. Kuzanyan. Applied Optics, 64, 1 (2025).
- 27. A. Gulian, A.M. Gulian. Mod. Phys. Lett. B, 34, 2050403 (2020).
- 28. K. Samwer, K. Winzer. Z. Physik B, 25, 269 (1976).
- 29. G.K. White, S.J. Collocott. J. Phys. Chem. Ref. Data, 13, 1251 (1984).
- 30. C.Y. Ho, R.W. Powell, P.E. Liley. J. Phys. Chem. Ref. Data, 3, 689 (1974).
- 31. P.D. Desai, T.K. Chu, H.M. James, C.Y. Ho. J. Phys. Chem. Ref. Data, 13, 1069 (1984).
- 32. W. Duffy, S. Dalal, M. Quiazon. J Appl. Phys., 81, 6675 (1997).
- G.T. Furukawa, T.B. Douglas, R.E. McCoskey, D.C. Ginnings. J. Res. Nat. Bur. Stand., 57, 67 (1956).
- 34. M.W. Wolfmeyer, J.R. Dillinger. Phys. Lett., 34A, 247 (1971).

NANO-SCALE THERMOELECTRIC SINGLE-PHOTON DETECTOR

A.A. KUZANYAN, A.S. KUZANYAN, V.R. NIKOGHOSYAN, L.G. MHERYAN, V.T. TATOYAN, V.S. KUZANYAN, G.R. BADALYAN

The article considers the features of heat propagation released by a single photon in a thermoelectric sensor with a surface area of $0.25 \,\mu\text{m}^2$ consisting of a dielectric substrate (Al₂O₃), a heat sink (Mo), a thermoelectric layer (La_{0.99}Ce_{0.01}B₆), and an absorber (W) sequentially located on each other. The results of heat propagation simulation in the sensor with an operating temperature of 0.5, 0.8, 1, 1.2, and 1.5 K upon absorption of photons with energies of 0.8 and 1.65 eV are presented. The equivalent power of Johnson and phonon noise is calculated. The power of the signal arising on the sensor and the signal-to-noise ratio are determined. A comparison is made with the characteristics of a sensor of the same design with a surface area of 1 μ m². The calculations were performed using the three-dimensional matrix method based on the equation of heat propagation from a limited volume. It is shown that decreasing the surface area of the sensor leads to an increase in the signal/noise ratio, and therefore to an increase in the efficiency of recording the already absorbed photon. This result is especially important for single-photon detection in the near infrared region.

Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.90–105 (2025) УДК 539.37 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-90

ОБРАЗОВАНИЕ ЗАРОДЫШЕЙ АЛМАЗА В ОБЛАСТИ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКОЙ СТАБИЛЬНОСТИ КАК РЕЗУЛЬТАТ ПРЯМОГО ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА ГРАФИТ–АЛМАЗ МАРТЕНСИТНОГО ТИПА

А.Н. АВАГЯН^{1*}, Г.Г. АРУТЮНЯН², А.В. ОВСЕПЯН², М.С. САКАНЯН², А.К. КОСТАНЯН¹

¹Институт общей и неорганической химии (ИОНХ) НАН РА, Ереван, Армения ²Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: almaz-synthesis@mail.ru

(Поступила в редакцию 20 февраля 2025 г.)

В стохастическом приближении с учетом выводов теории упругости микронеоднородных сред рассмотрена модель образования зародышей алмаза в камере высокого давления (КВД) как результат прямого перехода графит–алмаз. Приведены соображения относительно распределения числа зародышей N в зависимости от интенсивных параметров P и T. Предположение о равенстве числа выращенных кристаллов алмаза числу образовавшихся зародышей алмаза обеспечило возможность использовать нормальное распределение (распределение Гаусса) для анализа процессов зарождения алмаза. В результате получено вероятностное аналитическое выражение для числа зародышей, позволяющее с достаточной точностью определить N в зависимости от значения измеряемых давления (P_{meas}) и температуры (T_{meas}). Оценена скорость образования зародыша алмаза в рамках модели фазового перехода мартенситного типа.

1. Введение

Со времени реализации процесса синтеза алмаза в 1953 г. в Швеции не прекращаются интенсивные исследования по изучению процессов, происходящих при кристаллизации алмаза из различных фаз и соединений углерода. Несмотря на накопленный к настоящему времени обширный материал исследований как теоретического, так и экспериментального характера по кристаллизации алмаза в расплавах металлов и сплавов, проблема прямых фазовых переходов графит– алмаз при высоких давлениях >10 ГПа и температурах $\approx 3000^{\circ}$ С остается предельно актуальной. Отметим, что механизм кристаллизации алмаза, как на стадии зарождения алмаза, так и при дальнейшем его росте, остается предметом достаточно широких дискуссий [1–16].

На сегодняшний день в центре внимания остаются два основных физических механизма зарождения и роста алмаза из графита: мартенситного типа как прямой структурный фазовый переход графит–алмаз, и диффузионного типа – через пересыщенный раствор углерода, растворенного в металле-растворителе. Отметим, что реальный промышленный синтез из графита проходит при давлениях от

5 ГПа до 10 ГПа и температурах от 1000 до 2500°С в присутствии металлов и сплавов-растворителей. Зарождение и рост фазы алмаз из пересыщенного углеродом раствора в металлах-растворителях может показаться возможным, как механизм флуктуационного зарождения фазы алмаз. Однако следует отметить, что по результатам работ [4, 5, 17] вероятность флуктуационного зарождения новой алмазной фазы ничтожно мала как для гомогенной, так и для гетерогенной нуклеации.

Остановимся на этом вопросе подробнее. Оценку вероятности флуктуационного зарождения алмазной фазы целесообразно провести в рамках классической термодинамики и статистической физики. [5, 6, 17, 18]. Из общепринятых физических соображений энергия, необходимая для образования зародыша внутри пересыщенного раствора-расплава (гомогенное зарождение), есть сумма, состоящая из уменьшения энергии при фазовом переходе, разности термодинамических потенциалов и увеличения энергии, связанной с возникновением поверхности раздела алмаз–раствор:

$$\Delta E \approx -\Delta \mu \rho R^3 + \sigma_{\text{aver}} R^2. \tag{1}$$

Здесь R – характерный размер кристалла, μ – термодинамический потенциал (на единицу веса), σ_{aver} – средняя поверхностная энергия алмаз–расплав, ρ – плотность алмаза.

Оценим размер критического зародыша и энергию активации как

$$r_{\rm crit} = \sigma_{\rm aver} / (\rho \Delta \mu), \qquad (2)$$

$$U = \sigma_{\text{aver}}^3 / \left[\rho^2 \left(\Delta \mu \right) \right]^2.$$
(3)

Величина σ для алмаза порядка $\sigma \approx 10^{3} \frac{\text{эрг}}{\text{см}^2}$. Значение σ настолько велико, что можно считать его равной σ_{aver} для контакта алмаза с любой поверхностью, и есть величина того же порядка $\sigma = 10^3 \frac{\text{эрг}}{\text{см}^2}$ (точное значение σ_{aver} – алмаз в расплаве никеля 2700 $\frac{\text{эрг}}{\text{см}^2}$ [4]). Для оценочных значений воспользуемся известным соотношением при переходе графит–алмаз [19]

$$\Delta \mu \approx \Delta V \times \Delta P \approx 10^2 \text{ эрг.}$$
(4)

Подставив реальные значения конкретного эксперимента [19] $\Delta V = 10^{-3} \text{ см}^{-3}$ и $\Delta P = 1$ кбар = 0.1 ГПа, вероятность флуктуационного возникновения зародыша алмаза согласно [17, 18] будет:

$$W \approx \frac{V}{r_{\rm crit}^3} e^{-\frac{u}{KT}}$$
(5)

Здесь V – стандартный объем КВД для проведения экспериментов в широком диапазоне давлений (ячейка Бриджмена), $r_{\rm crit} = 10^{-6}$ см [4]. Множитель в формуле (5) при $V = 10^{-3}$ см³ получим $\frac{v}{r_{crit}^3} \approx 10^{15} \approx e^{40}$ и оценка энергии активации по Банди [11] при $u \approx 10^{-8}$ эрг, $e^{\frac{u}{KT}} \approx e^{-10^3}$. Получив оценочно $W \approx e^{40} \times e^{-10^3}$, видим, что W является ничтожно малой величиной и, следовательно, можем утверждать, что зарождение зародышей алмаза практически невозможно. Однако процесс успешно реализуется не только в лабораторных экспериментах, но и в промышленных технологиях.

Целью настоящей работы является попытка теоретического описания и обоснования процесса возникновения критических и закритических зародышей алмаза в стохастическом приближении как результат прямого фазового перехода графит–алмаз мартенситного типа на первых нескольких миллисекундах [20] от начала процесса синтеза в области термодинамической стабильности алмаза. Последующий же рост критических и закритических зародышей алмаза протекает по раствор расплавному диффузионному механизму [16].

2. Процедурные эксперименты по установлению оптимальных параметров *P, T* при разработке режимов синтеза алмаза в области термодинамической стабильности в КВД

Отметим, что традиционные эксперименты при разработке режимов синтеза алмаза протекают по следующей схеме: при T = const пробегаются ряд значений по давлению P с шагом 0.1–0.2 ГПа и наоборот при P = const пробегаются значения по температуре с шагом, заданным экспериментатором, обычно 50–100°С. Целью таких экспериментов является определение максимального выхода алмазов в весовом исчислении либо достижение конкретных физико-механических, оптических, электрофизических показателей синтезируемых кристаллов алмаза. Проделав аналогичные эксперименты и предположив, что количество критических и закритических зародышей алмаза N, образовавшихся на первых миллисекундах [20] процесса синтеза, и количество выросших кристаллов алмаза за все время протекания процесса синтеза в КВД остается постоянным, построим графики зависимости количества критических и закритических зародышей N от интенсивных параметров P и T.

Эксперименты проводились в постоянном объеме КВД: $V_{\text{HPC}} = 15 \text{ см}^3$, t = 120 сек. Графит ГМЗ-ОСЧ-7.3. Растворитель – сплав Ni:Mn = 60:40% (рис.1, 2).

На рис.1 при температуре T > 1750 К наблюдается выход из области стабильности алмаза (резкое падение N) ввиду температурного смещения процесса от линии равновесия в область стабильности графита по фазовой диаграмме углерода.



Рис.1. Зависимость количества кристаллов N от температуры T при постоянном давлении P_{meas} 5.5–5.7 ГПа. Синтез проводили в интервале температур $T_{\text{mea}} \sim 1100-1750 \text{ K}$: I -экспериментальная кривая, 2 - теоретическая кривая.



Рис.2. Зависимость количества кристаллов N от давления P при температуре $T_{\text{meas}} = 1650^{\circ} \pm 20 \text{ K}$: I – экспериментальная кривая, 2 – теоретическая кривая.

Количество критических и закритических зародышей алмаза, отождествленное с количеством кристаллов алмаза, выросших в КВД за время синтеза (120 сек.), определялось прямым счетом для каждой точки по *T* и *P*. Осуществлялось 10 замеров с последующим усреднением, использовался оптический микроскоп (МБС-9) и прибор Bettersize-S3. При замерах и счете отсеивалась группа меньше 0.1 мкм, что составляло менее 0.2% от веса конкретной партии.

Эксперименты проводились с использованием графита ГМЗ ОСЧ–7.3, сплава растворителя Ni:Mn= 60:40%, при соотношении графит–сплав 50 на 50% по весу, в объеме V = 15 см³, давлении P = 5.5-5.7 ГПа, температуре T = 1650 К при разных временах протекания процессов синтеза (t = 120, 180, 240 и 300 сек).

Эксперименты показали, что количество кристаллов за различные времена протекания процесса синтеза алмаза, можно считать одинаковым. Увеличение же выхода фазы алмаз в весовом выражении объясняется ростом кристаллов алмаза, т.е. наращиванием их массы. Таким образом предположение о тождественности количества критических и закритических зародышей алмаза и выросших кристаллов алмаза в КВД подтверждается экспериментально, и можно считать его вполне корректным.

3. Образование зародыша алмаза в КВД при стандартном снаряжении смесью порошка графита и сплава растворителя

Рассмотрим процесс образования зародышей алмаза как следствие возможной реализации условий по давлению P и температуре T прямого фазового перехода графит–алмаз [7, 8], возникающего в локальных областях контактов, несовершенств поверхностей графитовых частиц, металла-растворителя, заполняющих объем КВД [8], который подвергнут «сильному» всестороннему сжатию. Отметим также, что рассматриваемая система является гетерогенной, а возможность гомогенного рассмотрения процесса относится к локальной области, занятой пересыщенным углеродом раствором металла-растворителя, размером не более 250 мкм, где вероятность W образования зародыша алмаза, как мы оценили, ничтожно мала.

Поскольку существующие в настоящее время методы измерений (P, T)-параметров в КВД (реперные элементы, соединения, термопары и т.д.) не могут обеспечить измерения в нано-метрических областях, то наши представления ограничиваются усредненными, макроскопическими данными по температуре и давлению в реакционном объеме КВД. Однако учитывая тот факт, что рассматриваемая система (снаряжение КВД), является гетерогенной, т.е. состоит из множества малых контактов наноразмерных поверхностей и подвергнута воздействию высокого давления (всестороннему сжатию), естественно предположить возможность возникновения пиковых – амплитудных значений, рассматриваемых параметров P и T для областей с поверхностью контакта $S \approx \pi r^2_{\text{crit}}$, где $r^2_{\rm crit}$ критический радиус зародыша алмаза. Выдвинутое предположение согласуется с выводами теории упругости микронеоднородных сред [21] и механики микро- и наноконтактных взаимодействий твердых тел [22]. Для наглядности качественно изобразим локальные значения давлений на фоне среднего измеряемого давления в одномерном случае на рис.3. Введем обозначения $P_{\text{meas}} \rightarrow P_{\text{aver}}$ $(среднее) \rightarrow P_i и P_{trans} \rightarrow P_{crit}$ (критические).



Рис.3. Характерное распределение «пиковых» – амплитудных значений локально возникающих давлений. Случайным образом распределенные локальные «всплески», амплитудные пиковые давления $P > P_{\text{aver}}$ в контактных областях $S \approx \pi r^2_{\text{crit}}$, имеющие характер некоего барического «шума», на фоне измеряемой усредненной величины давления P_{aver} , (кривая 1). Макроскопическое «среднее» измеряемое давление P_{aver} , (кривая 2). Критическое давление фазового перехода графит–алмаз (кривая 3); L – линейная координатная ось, выбранная вдоль любого направления в КВД.

Аналогичная ситуация возникает с температурой, так как протекание электрического тока нагрева обусловлено контактами между частицами графита. Зная, что при воздействии давления проводимость графита возрастает [21, 23, 24], делаем вывод, что в локальных областях $S \approx \pi r^2_{crit}$ пиковых давлений реализуется условие для пропускания максимальных плотностей электрического тока, а значит и максимальные значения температуры, совпадающие с минимальными контактными поверхностями зерен $S \approx \pi r^2_{crit}$. Вышеизложенное представлено на рис.4. Введем обозначения T_{meas} (среднее) $\rightarrow T_{aver} \rightarrow T_i$ и $T_{trans} \rightarrow T_{crit}$ (критические).

Следует подчеркнуть, что рассматриваемая температурная нестабильность может существовать весьма ограниченное время, так как высокая теплопроводность системы быстро приведет ее к измеряемому значению температуры T_{aver} . Пиковые значения по давлению тоже релаксируют до измеряемого давления P_{aver} , вероятно за то же время (несколько миллисекунд [20]), что связано с плавлением металла-растворителя, пластической деформацией графита, находящегося в



Рис.4. Характерное распределение температурных локальных «пиковых» значений. Возникающий температурный «шум» на уровне макроскопического температурного измеряемого фона $T, T > T_{crit}$. (кривая I). Измеряемое среднее значение температуры T_{aver} . (кривая 2); L – линейная координатная ось, выбранная вдоль любого направления в КВД.

реакционном объеме КВД и образованием более плотной фазы алмаз. Очевидно совпадение пиков локальных давлений и температур [23, 24], которые случайным образом распределены в объеме КВД. Для наглядности положительную ось температур повернем на 180° и совместим с рис.3 как показано на рис.5. Здесь $S_{\rm crit} \approx \pi r_{\rm crit}^2$ – поверхность, которая формирует объем $V_{\rm crit} \approx 4/3 r_{\rm crit}^3$, в котором выполняются термодинамические условия для прямого фазового перехода графит–алмаз и, следовательно, происходит зарождение и рост зародышей алмаза критических и закритических размеров.

Заштрихованные области на рис.5 являются областями нано-локальной реализации условий прямого фазового перехода графит–алмаз ($P \approx 10-13$ ГПа, $T \approx 3000$ K) по данным [6, 7]. Из изложенных рассуждений ясно, что, увеличивая или уменьшая ток нагрева (т.е. уровень «температурного шума»), можно регулировать количество центров кристаллизации (зарожденных критических и закритических зародышей алмаза). Аналогичные рассуждения верны для менее податливого в промышленных условиях параметра давления.

Определим характер распределения пиковых – амплитудных значений для давления и введем обозначения. Известно [9], что для различных марок поликристаллических графитов, используемых в технологиях синтеза алмаза, существуют различные значения L_e , L_a (L_e , L_a – параметры решётки) т. е. размерные, базисные и призматические факторы совершенных кристаллитов графита. Отметим, что кристаллиты графита с размерами до 500 Å являются совершенными образованиями с максимальной твердостью, и с точки зрения теории упругости микронеоднородных сред являются центрами пиковых – амплитудных давлений



Рис.5. Схематическое изображение возникновения *P*, *T* условий прямого фазового перехода графит–алмаз в нано-метрических контактных областях.

при всестороннем сжатии [21, 25–27]. Так для С–3 $L_a = 475$ и $L_c = 145$ Å; для ГМЗ – ОСЧ –7.3 $L_a = 601$ и $L_c = 160$ Å; для ГСМ–1 $L_a = 1250$ и $L_c = 375$ Å. Выберем любой из них. Очевидно, что L_a и L_c могут служить размерным фактором распределения локальных, наноразмерных, «пиковых», амплитудных значений давлений и температур [1, 21, 23, 24] для областей монокристалличности кристаллитов (высокой твердости), объемом $V_{crystallite} \ge V_{crit}$, $V_{crit} \ll V_{HPC}$, где возникают термодинамические условия для прямого фазового перехода графит–алмаз. Из условия $V_{crit} \ll V_{HPC}$ ясно, что число вероятных «пиковых» – амплитудных значений достаточно велико и, следовательно, согласно предельной теореме теории вероятностей [28, 29], наше распределение «пиковых» – амплитудных значений по давлениям и температурам стремится к нормальному распределению двух случайных независимых величин P и T или распределению Гаусса [10].

Запишем нормальное распределение вероятности пиковых, амплитудных значений для давлений *P* в виде

$$f(P) = \frac{1}{\sigma_p \sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(P - \mu(P_i))^2}{2\sigma_p^2}\right],\tag{6}$$

где количество «пиковых» амплитудных значений давлений больших или равных $P_{\rm crit}$ определяет возможное число образующихся зародышей алмаза N, σ_p – среднеквадратическое отклонение. Полное возможное число зародышей в КВД обозначим N_0 . Определим N_0 как $N_0 = \frac{V_{\rm graph}}{V_{\rm eff}} \approx \frac{V_{\rm graph}}{(10L_\alpha)^3}$, где $V_{\rm graph}$ – объем реакционного графита в КВД, $V_{\rm eff} \approx (10L_\alpha)^3$ -оценочный эффективный объем [30], соразмерный с объемом критического зародыша алмаза внутри кристаллита графита в зоне нано-размерных контактов, где достигаются (P, T)-условия прямого фазового перехода графит–алмаз (рис.6). При определении N_0 мы исходим из того факта, что для фазы алмаз $r_{\rm crit} \approx 10$ нм и содержит 10^6 атомов углерода, чем и обеспечивается проявление структуры фазы алмаза [4]. Определим также параметры нормального Гауссовского распределения исходя из того, что на экспериментальной кривой зависимости количества кристаллов от давления (рис.2) имеем точку перегиба в области 5.5–5.7 ГПа. Очевидно, что в рассматриваемой



модели, средняя точка или вершина распределения пройдет через измеряемое

давление P_{meas} в КВД, т.е. $\mu(P_{\text{meas}}) = P_{\text{meas}}$.

Рис.6. Распределение «пиковых» амплитудных значений локальных давлений в нано-метрических контактных областях в зависимости от величины измеряемого *P*_{meas}.

Распределение случайной величины давления P, ответственного за образование зародышей алмаза, лежит в заштрихованной части площади под кривой распределения вероятности справа от точки P_{crit} и может быть представлено в виде интегральной функции Гаусса $\phi(P)$

$$\phi(P) = \frac{1}{\sigma_p \sqrt{2\pi}} \int_{P_{er}}^{\infty} \exp\left[-\frac{\left(P - P_i\right)^2}{2\sigma_P^2}\right] dP.$$
(7)

Аналогичные рассуждения с учетом совпадения «пиковых» температур с «пиковыми» значениями давлений (рис.5) [23, 24, 31] дадут функцию распределения случайной величины $\phi(T)$

$$\phi(T) = \frac{1}{\sigma_p \sqrt{2\pi}} \int_{T_{cr}}^{\infty} \exp\left[-\frac{(T-T_i)^2}{2\sigma_T^2}\right] dT .$$
(8)

Совместное распределение двух независимых случайных величин (P,T) подчинено известному правилу [29, 19] $\phi(P,T) = \phi(P) \times \phi(T)$. Откуда имеем:

$$\Phi(P,T) = \frac{1}{\sigma_P \sigma_T 2\pi} \int_{P_{cr}}^{\infty} \int_{T_{cr}}^{\infty} \exp\left[-\frac{\left(P - P_i\right)^2}{2\sigma_P^2}\right] \exp\left[-\frac{\left(T - T_i\right)^2}{2\sigma_T}\right] dP dT \,. \tag{9}$$

Очевидно, что число возникающих зародышей алмаза Not (P, T) будет равно

$$N = N_0 \phi(P, T). \tag{10}$$

Определим физически реальные пределы интегрирования с применением правила 3 (29, 19) из рис.6. Для верхних пределов имеем:

$$(P_i + 3\sigma_P + \Delta\sigma_p - P_{\text{crit}}) = Z, \ (0 \le \Delta\sigma_p \le 3\sigma_p)$$

$$(T_i + 3\sigma_T + \Delta\sigma_T - T_{\text{crit}}) = Q, \ (0 \le \Delta\sigma_T \le 3\sigma_T)$$

$$(11)$$

Нижними пределами являются *P*_{crit} и *T*_{crit}. Для числа возникающих зародышей алмаза в КВД в зависимости от *P* и *T* имеем:

$$N = N_0 \frac{1}{\sigma_P \sigma_T 2\pi} \int_{P_{cr}}^{Z} \int_{T_{cr}}^{Q} \exp\left[-\frac{\left(P - P_i\right)^2}{2\sigma_P^2}\right] \exp\left[-\frac{\left(T - T_i\right)^2}{2\sigma_T}\right] dP dT .$$
(12)

На рис.7 отображена ситуация полного перехода (при $T \ge T_{crit}$) всего реакционного объема графита в фазу алмаз. Данная ситуация является условием синтеза поликристаллических алмазов типа карбонадо, балас, АСПК, АСР, и т.д. В выражении (10) $N = N_0$, так как $\phi(P,T) \approx 1$ при $\Delta \sigma_p = 3\sigma_p$. Подынтегральное выражение в (12) есть функция плотности вероятности двумерного распределения случайных независимых величин (P,T) и имеет вид

$$f(P,T) = \frac{1}{2\pi\sigma_P\sigma_T} \exp\left[-\left[\frac{(P-P_i)^2}{2\sigma_P^2} + \frac{(T-T_i)^2}{2\sigma_T^2}\right]\right].$$
 (13)



Рис.7. Вероятностная функциональная зависимость полного перехода реакционного графита в алмаз.

Функция f(P,T) зависит от четырех параметров P_{meas} , T_{meas} , σ_P , σ_T и представляет собой поверхность в виде Гауссовского «колокола» (рис.8), вершина которого находится над точкой P_{meas} , T_{meas} . на плоскости (P, T), которая является точкой пересечения измеряемых параметров процесса синтеза. Параметры σ_P и σ_T определяют форму кривой распределения и зависят от кристаллографической структуры используемых графитов, которых более 50 модификаций [25–27].



Рис.8. Двумерное распределение P и T в виде «колокола» Гаусса. Плоскости S_T и S_P отсекают поверхность (a, b, c) по линиям P_{crit} и T_{crit} на плоскости (P, T). Поверхность (a, b, c) содержит множество значений вероятностей нахождения системы в (P, T) точках зародышеобразования в зоне проекции (a, b', c) на фазовой диаграмме углерода (рис. 9).

Поверхность (a, b, c) на «колоколе» двумерного распределения (P, T), отсеченная плоскостями S_P и S_T есть множество точек значений вероятностей, удовлетворяющих критериям $P \ge P_{crit}$, $T \ge T_{crit}$, где обеспечиваются термодинамические условия прямого фазового перехода графит–алмаз. Проекция поверхности (a, b, c) (рис.8), на плоскость с осями (P, T) отображает фазовую диаграмму углерода. Сектор (a, b', c) на обшей поверхности фазовой диаграммы углерода в зависимости от давления P_{meas} и температуры T_{meas} в КВД (рис.9).

Отметим, что движение центра «пятна» проекции по координатам P_{meas} , T_{meas} двумерного Гауссовского распределения (P, T) по поверхности фазовой диаграммы будет перекрывать области стабильности различных фаз углерода и межфазных границ. Определяя координаты центра распределения Гауссовского «колокола», получим значения вероятности возникновения конкретной фазы углерода.



Рис.9. Фазовая диаграмма углерода, с проекцией поверхности вероятностей (a, b, c), как зоны образования зародышей алмаза прямым фазовым переходом графит–алмаз (a, b', c).

4. Образование зародыша фазы алмаз из графита как фазовый переход первого рода мартенситного типа

Рассматриваемый нами процесс зарождения и роста критических и закритических зародышей алмаза очевидно относится к фазовым переходам первого рода в твердом состоянии. Проанализировав специфические особенности различных фазовых переходов в твердом состоянии [18, 32, 33], остановимся на модели фазового перехода мартенситного типа, который по своим особенностям подходит к нашему случаю. Процесс образования зародыша алмаза проходит в однокомпонентной среде, состоящей из углерода. Очевидно, что мы имеем дело с бездиффузионной перестройкой кристаллической решетки фазы графит в фазу алмаз.

Отметим, что мартенситное превращение от других фазовых превращений первого рода в твердом состоянии отличают две основные характеристики: 1) бездиффузионность, (химический состав исходной фазы (графит) и конечный фазы (алмаз) одинаков); 2) ориентированность. Новая фаза алмаз – закономерно ориентирована относительно старой фазы графит, сдвиговый деформационный характер превращения и пластинчатая форма образования являются типичными для мартенситного превращения. (Синтетические кристаллы алмаза кратковременного синтеза 0.3–1 сек имеют в основном уплощенную форму близкую к «чечевице»).

В рассматриваемой модели фазовый переход происходит в нано-контактных областях графитовых зерен [34–36], которые заполняют объем КВД (рис.6). На



Рис.10. Характерное распределение напряжений «давлений» в объеме $\approx V_{\text{crit.}}$

рис.10 показано характерное распределение напряжений «давлений» в объеме $V_{\rm crit}$ по мере возрастания давления от (а) до (d). В первом приближении выберем форму двояковыпуклой линзы [37], где и происходит процесс образования зародыша, т.к. именно в объеме $V_{\rm crit}$ обеспечиваются условия $P \ge P_{\rm crit}$ и $T \ge T_{\rm crit}$. Отметим, что скорость образования и роста мартенситной фазы алмаз должна быть больше, чем скорость релаксации параметров $P_{\rm crit}$ и $T_{\rm crit}$, до $P_{\rm meas}$ и $T_{\rm meas}$, соответственно.

Проанализируем скорость роста мартенситной фазы, используя выражение (23) из работы [38]. Оставаясь в рамках первого приближения для формы $V_{\rm crit}$, толщину линзы в ее центральной части обозначим через H и, приняв H < R, получим объем мартенситной фазы алмаз $V \approx V_{\rm crit}$ в виде:

$$V = \frac{\pi H R^2}{2} \left(1 + \frac{1}{12} \frac{H^2}{R^2} \right) \approx \frac{\pi H R^2}{2},$$
 (14)

а площадь поверхности будет:

$$S = 2\pi R^2 \left(1 + \frac{H}{R} \right) \approx 2\pi R^2 \,. \tag{15}$$

При возникновении в графите фазы алмаз изменение свободной энергии системы происходит вследствие: 1) изменения свободной энергии в объеме, занятой образованной фазой алмаз в области мартенситного превращения (свободная энергия фазы алмаз, естественно, меньше свободной энергии фазы графит); 2) образование поверхности раздела между фазой алмаз и окружающей фазы графит; 3) возникновения поля упругих напряжений внутри образовавшегося зародыша алмаза и в исходном графите.

В первом приближении будем считать, что в основном искажения, вызванные полем упругих напряжений, сосредоточены в графите и имеют характер деформаций сдвига. Смещения граничных слоев атомов углерода в фазе алмаз в зародыше пропорциональны их толщине с множителем *K*, который определяется из кристаллографических параметров используемого графита [4].

Упругие деформации вокруг мартенситной фазы алмаз имеют величину порядка H/R [21, 39, 40]. Примем, что объемы области, в которой сосредоточены напряжения, обуславливающие возникающие деформации, примерно равны $4/3\pi R^3$, тогда полное значение упругой энергии [41] по порядку величины равно:

$$\Delta F_E \approx K_2 \frac{H^2}{R^2} R^3 = K_2 \pi H^2 R , \qquad (16)$$

где К₂ – коэффициент пропорциональности [39, 40]. Полное изменение

свободной энергии системы вследствие образования мартенситной фазы алмаз запишем в виде

$$\Delta F = -\frac{\pi}{2}HR^2 \cdot \Delta F + 2\pi R^2 \sigma + K_2 \pi H^2 R .$$
⁽¹⁷⁾

В данном объеме V наиболее вероятно существование центра мартенситного превращения графит–алмаз, имеющего соотношение линейных размеров, которое обеспечивает минимум ΔF . Приравнивая к нулю $d\Delta F$, при условии V = const, получим

$$R = \frac{3}{4} \frac{K_2}{\sigma} H^2 \,. \tag{18}$$

Отметим, что если отнести значение ΔF_E к единице объема мартенситного образования алмаз, то величина окажется пропорциональной H/R [35–37, 40, 42].

Следовательно, при сдвиговом характере мартенситного превращения графит–алмаз, затраты энергии на создание поля упругих напряжений вокруг центра фазы алмаз уменьшается с уменьшаются отношения толщины «кристаллита» фазы алмаз к его радиусу.

Поскольку образование мартенситной фазы алмаз подобно образованию центра новой фазы при полиморфных превращениях в однокомпонентной системе, для анализа кинетики изменения ее размеров можно воспользоваться формулой (6) из работы [16]

$$\frac{dn}{dt} \approx -n_s \omega e^{-\frac{u}{KT}} - \frac{1}{KT} \frac{d\Delta F(n)}{dn}.$$
(19)

В данном случае число атомов, находящихся непосредственно у поверхности растущего зародыша алмаза, запишем как

$$n_{S} = \frac{S_{surf}}{\pi r_{a}^{2}} = 2 \frac{R^{2}}{r_{a}^{2}} \frac{9}{16} \frac{K^{2}}{\sigma^{2}} \frac{H^{4}}{r_{a}^{2}}, \quad \omega = \varpi = \frac{3}{2} \frac{KT_{D}}{h}, \quad dn \approx \frac{K_{2}^{2}}{r_{a}^{2} \sigma^{2}} H^{4} dH$$

Таким образом, скорость роста мартенситного образования «кристаллита» фазы алмаз по высоте

$$V_H = \frac{dH}{dt} \approx \frac{\sigma^2}{K_2^2} \frac{r_a^4}{h} \frac{T_D}{T} e^{\frac{u}{KT} \frac{1}{H^4} \frac{d\Delta F}{dH}}, \quad H_{\text{crit}} \approx 5 \frac{\sigma}{\Delta F_0}, \tag{20}$$

где T_D – температура Дебая алмаза. Используя формулу (16), найдем скорость роста «кристаллита» фазы алмаз V_R по радиусу

$$V_R = 3\pi \frac{K_2 \,\Delta F_0}{\sigma h} \frac{T_D}{T} e^{-\frac{u}{KT}(H-H_{crit})}.$$
(21)

Выражения (20) и (21) представим в упрощенном виде:

$$V_{H} = \alpha_{H} \left(1 - \frac{H_{\text{crit}}}{H} \right)$$
, при $H \gg H_{\text{crit}}$ $V_{H} \approx \alpha_{H}$
 $V_{R} = \alpha_{R} \left(H - H_{\text{crit}} \right)$, при $H \gg H_{\text{crit}}$ $V_{R} \approx \alpha_{R} H$. (22)

Откуда

$$H = \alpha_H t R \approx \frac{3}{4} \frac{K_2}{\sigma} \alpha_R^2 t^2 = \beta t, \qquad (23)$$

или

$$V_R = \frac{3}{2} \frac{K_2}{\sigma} \alpha_H^2 t = \beta t .$$
⁽²⁴⁾

При росте «кристаллита» величина H увеличивается и скорость роста «кристаллита» по толщине возрастает, стремясь к предельному значению, которое определяется по формуле (22) при $\frac{H_{\text{crit}}}{H} \ll 1$. При этом V_R непрерывно увеличивается. Коэффициент K_2 может быть оценен на основании следующих соображений. Деформация чистого сдвига ε , переводящая решетку графита в решетку алмаза по порядку величины равна K H/(2R) [43, 44]. При этом плотность упругой энергии будет:

$$E_0 = \mu \frac{\varepsilon^2}{2} = \frac{\mu}{8} K^2 \frac{H^2}{R^2},$$
 (25)

где µ – модуль сдвига алмаза. Полная упругая энергия в области, окружающей мартенситную фазу алмаз, составит:

$$\Delta F_E = \frac{4}{3} \pi R^3 E_0 = \frac{\pi}{6} K^2 \mu R H^2 \,. \tag{26}$$

Отнеся ΔF_E к единице объема «кристаллита» алмаза, получим

$$\frac{\Delta F_E}{V} = \frac{1}{3} K^2 \mu \frac{H}{R}.$$
(27)

Из выражений (14) и (26) получим:

$$K_2 = \frac{1}{6} K^2 \mu \,. \tag{28}$$

Подставив справочные значения соответствующих физических величин, относящихся к графиту и алмазу [4, 8, 45] в формулы (20)–(24) и (26), получим оценочно $V_R \approx 10^5$ см/сек, $\beta \approx 10^5$ см/сек² и $V_H \approx 10^4$ см/сек. Полученные результаты требуют определенных объяснений.

Развитие фазы алмаз в радиальном направлении идет с очень большим ускорениями, следовательно, с большой скоростью, что невозможно рассматривать как скорость роста кристаллитов алмаза (средняя скорость роста монокристалла алмаза $V = 10^{-6}$ см/сек [4, 8, 45]). Скорости V_R и V_H скорее всего следует рассматривать как скорости образования мартенситной фазы алмаз. Большие величины V_R и V_H обусловлены выбранной моделью мартенситного перехода графит–алмаз в объеме двояковыпуклой линзы и распределению напряжений в этом объеме. Полученные формулы непригодны за пределами размеров критических и закритических зародышей мартенситной фазы алмаз. Отметим также, что граница фаз графит–алмаз при упругопластической деформации в процессе образования фазы алмаз характеризуется интенсивным сдвиговым движением, как базисных плоскостей графита так и больших групп дислокаций, скорости которых ограниченны скоростью пластической деформации графита $C = 2 \times 10^{-8}$ см/сек при 20°C и $C \approx 10^{-4}$ см/сек при 2000°C [46].

В данном случае скорость C является максимально возможной скоростью релаксации P_{crit} и T_{crit} до величин P_{meas} и T_{meas} и она много меньше V_R и V_H , т.е. процесс зарождения мартенситной фазы алмаз происходит быстрее релаксации

параметров $P_{\rm crit}$ и $T_{\rm crit}$, что является необходимым условием для поддержания параметров $P_{\rm crit}$ и $T_{\rm crit}$. Из вышеизложенного можно сделать вывод, что образование критических и закритических зародышей фазы алмаз в области термодинамической стабильности алмаза при высоких давлениях и температурах есть физический процесс, в корне отличающийся то роста кристаллов алмаза. Сам процесс образования зародышей в нано-метрических объемах требует глубокого изучения методами как теоретической, так и экспериментальной физики.

5. Заключение

В стохастическом приближении с использованием стандартного, нормального распределения Гаусса, теории и практики мартенситных превращений, а также некоторых положений физической кинетики рассмотрен вопрос образования критических и закритических зародышей синтетических алмазов в области термодинамической стабильности алмаза. Получено вероятностное аналитическое выражение для количества *N* образующихся критических зародышей алмаза из графита в КВД. Определен нижний предел давлений и температур для без катализаторного синтеза поликристаллических алмазов типа балас и карбонадо и т.д. (Р от 13 ГПа, Т от 2500 К до 3000 К). Показана возможность графически определять вероятность образования той или иной фазы углерода в зависимости от расположения (Р, Т) центра распределения на фазовой диаграмме углерода в трехмерном изображении. Предложенный метод использования двумерного Гауссовского распределения интенсивных термодинамических параметров может быть применен при изучении фазовых переходов в твердом состоянии, например, кристаллизации разных типов ситаллов. Полученные оценочные значения для скоростей образования – формирования заролышей фазы алмаз мартенситного пластинчатого типа в модели двояковыпуклой линзы требуют очень глубокого изучения, так как, вероятно, в процессе образования зародышей интенсивно включаются как эффекты туннелирования, так и эффекты квантовых флуктуаций. Настоящая работа является попыткой некого обобщения многолетнего опыта работы в области синтеза алмаза на базе Ереванского производственного объединения «Алмаз» и работ, проводящихся в ИОНХ НАН РА и ЕрГУ, в этом направлении. Надеемся, что изложенные соображения будут полезны как производственникам, так и научным работникам в области физики высоких давлений.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Д.В. Федосеев, Н.Г. Санжарлинский, и др., Изв. АН СССР, серия Химическая, 11, 2647 (1978).
- 2. Б.В. Дерягин, Д.В. Федосеев. Изв. АН СССР, 238, 92 (1978).
- 3. Д.В. Федосеев, Б.В. Дерягин. Коллоидный журнал, 41, 750 (1979).
- Н.В. Новиков, Д.В. Федосеев, А.А. Шульженко, Г.П. Богатырева. Синтез алмазов, Наукова думка, Киев, 1987.
- 5. Р.Г. Архипов, С.Д. Варфаламеев, С.В. Попова. ДАН СССР, 199, 55 (1971).
- 6. Л.Ф.Верещагин, Ю.Н. Рябинин, А.А Семерчан, Л.Ф. Лившиц, Б.П. Демяшкевич, В.С. Попова. ДАН СССР, **206**, 78, (1972).
- 7. В.И. Трофимов, С.М. Савинин. ДАН СССР, 246, 1115 (1979).
- 8. Д.В. Федосеев, Б.В.Дерягин, И.Г. Варшавская, А.С. Семенова-Тянь-Шанская,

Р.К. Чужко. Кристаллизация алмаза. Наука, Москва, 1984.

- 9. А.И. Прихна, А.А. Шульженко и др., Сверхтвердые материалы, 2, 3 (1980).
- А.Н. Авакян, А.Ш. Гюлхасян. XI-Международная конференция "Высокие давления в науке и технике", Киев, 36, 1987.
- 11. F.R. Bundy. Chem J. Phys., 38, 631 (1963).
- F.S.U. D'Haenens-Johansson, J.E. Batler, A.N. Katrusha. Reviews in Mineralogy and Geochemistry, 88, 689 (2022).
- 13. J. Collins. Masters tesis, Durhan University, 2023. https://etheses.dur.ac.uk/15103/.
- 14. В.Ф Бритун, А.В. Курдюмов. Физика и техника высоких давлений, 11, 34 (2001).
- 15. **А.В.Ножкина, А.И. Лаптев.** Породоразрушающий и металлообрабатывающий инструмент техника и технология его изготовления и применения, вып. 14, 208 (2015).
- 16. А.Н. Авагян, А.В. Овсепян, Г.Г. Арутюнян, М.С. Саканян. Известия НАН Армении, физика, **58**, 310, 2023.
- 17. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теоретическая физика. том Х. Наука, Москва, 1979.
- 18. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Статистическая физика. Наука, Москва, 1979.
- 19. R. Berman, S.F. Simon. Phys. Chem., 59, 333 (1955).
- 20. F.P. Bundy. Science, 137, 1055 (1962).
- 21. Т.Д. Шермергор. Теория упругости микронеоднородных сред. Наука, Москва, 1977.
- 22. Ю.И. Головин, А.И. Тюрин. Природа, 1052(4), 60 (2003).
- 23. А.М. Молодец, А.А. Голышев, А.Н. Емельянов, Ю.М. Шульга, В.Е. Фортов. Письма в ЖЭТФ, 90, 263 (2014).
- 24. Е.В. Суслова, Е.А. Архипова, А.В. Калашник, А.С. Иванова, С.В. Савилов, Х. Ся, В.В. Лунин. Журнал физической химии, 93, 1551 (2019).
- 25. А.А. Ершов, А.В. Дмитриев, А.А. Ершова. Химия твердого топлива, 5, 43 (2023).
- 26. В.А. Грешняков, Е.А. Беленков. ЖЭТФ, 151, 310 (2017).
- 27. О.В. Кропотин, Ю.К. Машков, В.А. Егорова, М.В. Тренихин, Н.Н. Войтенко Омский научный вестник, 9, 19 (2006).
- 28. Н. Арлей, К. Бух. Введение в теорию вероятностей и математическую статистику. ИЛ, Москва, 1951.
- 29. П. Уиттл. Вероятность. Наука, Москва, 1982.
- 30. С.С. Букалов, Л.А Михалицин, Я.В. Зубавичус, Л.А. Лейтес, Ю.Н. Новиков. Российский химический журнал, 50, 83, 2006.
- 31. Е.С. Вентцель. Теория вероятностей. Высшая школа, Москва, 2006.
- 32. Г.В. Курдюмов. ДАН СССР, 6, 537 (1948).
- 33. **Б.И. Еременко.** Фазовые и структурные превращения в металлических сплавах. Металлургия, Москва, 1987.
- 34. **Л.Ф. Верещагин.** Избранные труды. Синтетические алмазы и гидроэкструзия-Москва, Наука, 1982.
- 35. Г.А. Малыгин. УФН, 171, 187 (2001).
- 36. **Г.А. Малыгин.** ФТТ, **61**, 1310 (2019).
- 37. Г.А. Хупджуа. Эффект памяти формы и сверхупругость. Изд. МГУ, Москва. 2014.
- 38. А.Н. Авагян, А.В. Овсепян, Г.Г. Арутюнян. Известия НАН Армении, Физика, 52, 321 (2007).
- 39. А.С. Козерук, Д.Л. Мальпика, М.И. Филонова, В.О. Кузнечик Наука и техника, 18, 416 (2019).
- **И.В. Хомская.** https://www.dissercat.com/content/fazovye-i-strukturnye-prevrashcheniyav-splavakh-na-osnove-zheleza-i-medi-pri-intensivnykh-u/read
- 41. **К.В. Владимирский.** ЖЭТФ, **17**, 530 (1947).
- 42. Г.А. Малыгин. Физика твердого тела, **50**, 1480 (2008).
- 43. И.Е. Костиков, Е.Е. Кузнецов, Н.М. Матченко. Естественные науки (Из-во Тульского Гос. Университета) **2**, 128 (2013).
- 44. О.В. Муравьева, А.В. Блинова, Л.А. Денисов, О.П. Богдан. Приборы и методы измерений, 15, 213 (2024).
- 45. Н.В. Новикова. Физические свойства алмаза. Наукова думка, Киев, 1987.
- 46. M. Thomas, H. Oh, R. Behoell, R. Schoell, S. House, M. Crespillo, K. Hattar, W. Windes, A. Haque. Materials, 17, 4530 (2024).

ԱԼՄԱՍՏԻ ՍԱՂՄԵՐԻ ԱՌԱՋԱՑՈՒՄԸ ԹԵՐՄՈԴԻՆԱՄԻԿ ԿԱՑՈՒՆՈՒԹՅԱՆ ՏԻՐՈՒՅԹՈՒՄ, ՈՐՊԵՍ ՄԱՐՏԵՆՍԻՏԱՅԻՆ ՏԻՊԻ ԳՐԱՖԻՏ-ԱԼՄԱՍՏ ԱՆՄԻՋԱԿԱՆ ՖԱՋԱՅԻՆ ԱՆՑՄԱՆ ԱՐԴՑՈՒՆՔ

Ա.Ն. ԱՎԱԳՅԱՆ, Գ.Գ. ՀԱՐՈՒԹՅՈՒՆՅԱՆ, Ա.Վ. ՀՈՎՍԵՓՅԱՆ, Մ.Ս. ՍԱԿԱՆՅԱՆ, Ա.Կ. ԿՈՍՏԱՆՅԱՆ

Ստոխաստիկ մոտարկմամբ և հաշվի առնելով միկրո ոչ միատարը միջավայրի համար առաձգականության տեսության եզրակացությունները դիտարկված է բարձր ձնշման խցիկում (ԲՀԽ) ալմաստի սաղմերի առաջացումը որպես գրաֆիտ-ալմաստ անմիջական անցում։ Բերված են նկատառումներ, N սաղմերի թվի բաշխվածության վերաբերյալ՝ կախված P և T ինտենսիվ պարամետրերից։ Այն ենթադրությունը, որ աձեցրած բյուրեղների քանակը հավասար է առաջացած սաղմերի թվին, հնարավորություն է տվել Գաուսի բաշխումը օգտագործել ալմաստի ծագման պրոցեսի անալիզի համար։ Արդյունքում N սաղմերի համար ստացվել է անալիտիկ հավասարում, որը թույլ է տալիս բավարար ձշտությամբ որոշել N-ը կախված P և T չափվող մեծություններից։ Տրվել է ալմաստի սաղմի առաջացման արագության գնահատականը ըստ մարտենսիտային տիպի ֆազային փոխակերպման մոդելի։

FORMATION OF DIAMOND NUCLEI IN THE THERMODYNAMIC STABILITY REGION AS A RESULT OF A DIRECT MARTENSITIC-TYPE GRAPHITE-TO-DIAMOND PHASE TRANSITION

A.N. AVAGYAN, G.G. ARUTYUNYAN, A.V. HOVSEPYAN, M.S. SAKANYAN, A.K. KOSTANYAN

In a stochastic approximation, considering the conclusions of the elasticity theory of micrononhomogeneous media, a model of diamond nucleation in a high-pressure chamber (HPC) is examined as a result of a direct graphite-to-diamond transition. Considerations regarding the distribution of the number of nuclei N as a function of the intensive parameters P and T are presented. The assumption that the number of grown diamond crystals is equal to the number of formed diamond nuclei allowed the use of a normal (Gaussian) distribution to analyze the nucleation process. As a result, a probabilistic analytical expression for the number of nuclei was obtained, enabling an accurate determination of N depending on the value of the measured pressure (P_{meas}) and temperature (T_{meas}). The rate of diamond nucleus formation is estimated within the framework of a martensitic-type phase transition model.

Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.106–114 (2025) УДК 535.015 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-106

МОДЕЛИРОВАНИЕ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ УГЛОВОГО ОТРАЖЕНИЯ ЧЕРНОГО КРЕМНИЯ

Г.Е. АЙВАЗЯН^{1*}, М.В. КАТКОВ², Л.М. ЛАХОЯН¹

¹Национальный политехнический университет Армении, Ереван, Армения ²Ningbo New Material Technology Co., Ningbo, Zhejiang, China

*e-mail: agagarm@gmail.com

(Поступила в редакцию 29 января 2025 г.)

Представлены результаты исследования углового отражения слоев черного кремния (b-Si), сформированных методом реактивного ионного травления. Расчеты методом матрицы переноса и экспериментальные измерения подтверждали превосходное антиотражающее свойство b-Si при углах падения светового излучения до 60°. Это обеспечивает стабильность тока короткого замыкания солнечных элементов в широком угловом диапазоне, что особенно важно для эффективной эксплуатации стационарных фотовольтаических станций в течение дня и при облачной погоде.

1. Введение

Улучшение поглощения света в кремниевых структурах путем формирования антиотражающих поверхностей является одним из важнейших вопросов для достижения высокой эффективности преобразования кремниевых солнечных элементов. В качестве таких поверхностей традиционно используются микропирамидальные текстуры, получаемые жидким химическим травлением [1, 2]. Для них низкий уровень отражения обеспечивается за счет многократного переотражения светового излучения от боковых поверхностей микропирамид, а также увеличиванием оптической длины пути падающего излучения.

Новая концепция, позволяющая достичь очень низких значений отражательной способности в широком диапазоне длин волн солнечного спектра, заключается в формировании поверхностной текстуры из так называемого черного кремния (black silicon, b-Si) [3]. Этот материал представляет собой массив плотно упакованных конусообразных наноразмерных выступов (наноигл) из кристаллического кремния. Превосходные антиотражающие свойства слоя b-Si обусловлены формированием эффективной среды с непрерывно изменяющимся показателем преломления по высоте массива наноигл.

В настоящее время оптические свойства (отражение, рассеяние, поглощение, пропускание) b-Si интенсивно изучаются с целью применения этого материала в качестве антиотражающих фронтальных поверхностей для однопереходных [4–6] и межслоев для многопереходных [7, 8] солнечных

элементов. Во многих работах экспериментально исследована и моделирована отражательная способность слоев b-Si в зависимости от их структурных параметров, методов формирования и режимов последующих обработок [9–13]. При этом, как правило, измерения и расчеты проводятся при нормальном падении светового излучения. В то же время, практический интерес также представляют оптические свойства слоев b-Si под разными углами падения излучения. Такие исследования позволят оценить эффективность солнечных элементов в реальных условиях эксплуатации, в частности, в течение всего дня, когда изменяется положение Солнца, и при пасмурной погоде, когда преобладает рассеянный свет. Кроме того, в многопереходных солнечных элементах свет проходит через несколько слоев, изменяя углы падения излучения на поверхности межслоя b-Si [7]. Изучение угловой зависимости отражения позволит оптимизировать дизайн тандемных структур.

В этой работе представлены результаты моделирования и экспериментального исследования отражательной способности слоев b-Si и фотоэлектрических параметров изготовленных на их основе однопереходных солнечных элементов при широком диапазоне угла падения светового излучения.

2. Экспериментальная часть

Для сравнительного анализа были изготовлены и исследованы экспериментальные образцы кремниевых структур с антиотражающим слоем b-Si и без него (далее именуемые нанотекстурированные и планарные, соответственно). В качестве исходных образцов использовались полированные пластины монокристаллического кремния *p*-типа толщиной 400 мкм с удельным сопротивлением 3.0 Ом×см. Слои b-Si формировались методом реактивного ионного травления (reactive ion etching, RIE) в газовой смеси SF₆ и O₂. Для процесса RIE были использованы технологические режимы, ранее определенные как оптимальные для однопереходных солнечных элементов [14]: давление в RIE камере 55 мТорр, продолжительность травления 10 мин, скорости потока газа 75 см³/мин для SF₆ и 40 см³/мин для O₂.

Тестовые солнечные элементы на основе нанотекстурированных и планарных образцов изготавливались с использованием стандартной технологической последовательности, описанной в [14]. Процесс включал следующие основные этапы: (i) высокотемпературная диффузия фосфора из источника POCl₃; (ii) формирование b-Si; (iii) нанесение пассивирующей пленки HfO₂; (iv) создание тыльных контактов Ti/Ag; (v) создание фронтальных сеточных контактов Al; (vi) отжиг при температуре 400°С в среде N₂ в течение 15 мин для снижения контактного сопротивления и активации процесса пассивации поверхности. Площадь солнечных элементов составляла 4 см². Технологические этапы (i) и (iii–vi) выполнялись одновременно для нанотекстурированных и планарных образцов.

Морфологию слоев b-Si исследовали с помощью сканирующего электронного микроскопа (Scanning Electron Microscope, SEM) SEMXL 40 Philips. Спектры отражения измеряли с использованием спектрофотометра UV-3101PC, оснащенного интегрирующей сферой диаметром 150 мм с центральным вращающимся столиком. Оптические измерения проводили при комнатной температуре на воздухе в спектральном диапазоне длин волн неполяризованного излучения $\lambda = 300-1100$ нм. Спектрофотометр работал в двух режимах. Первый из них режим нормального отражения, когда образец размещали на сфере под стандартным для таких экспериментов углом 8° к падающему излучению (рис.1а). Для предотвращения прямого попадания излучения на детектор использовалась перегородка (baffle), способствующая многократному отражению света внутри сферы. Второй режим – режим углового отражения, когда небольшой образец размерами 2×2 см² фиксировали в центре сферы на вращающемся столике, позволяющем изменять угол падения излучения θ в диапазоне 10–80° (рис.1b).

Фотоэлектрические параметры тестовых солнечных элементов, такие как напряжение холостого хода V_{oc} , ток короткого замыкания J_{sc} , коэффициент заполнения *FF* (Fill Factor) и эффективность преобразования энергии *PCE* (power conversion efficiency) измерялись с использованием солнечного имитатора и испытательной системы Solar Cell *I–V* (Ossila) в стандартных условиях испытаний (AM1.5G, 1000 Вт/м², 25°С) с применением вращающегося столика.



Рис.1. Схема измерения (а) нормального и (b) углового отражения.

3. Методика моделирования

Для моделирования оптических свойств слоев b-Si используются методы, основанные на электромагнитной теории, такие как приближение эффективной среды (effective medium approximation), метод конечных элементов (finite element method), строгий анализ связанных волн (rigorous coupled-wave analysis), метод конечных разностей во временной области (finite-difference time-domain) и др. [11, 15, 16]. В данной работе использован относительно несложный метод матрицы переноса (transfer matrix method, TMM) [17–19], в котором массив конусообразных наноигл слоя b-Si принимался за однородную оптическую среду с комплексным эффективным показателем преломления \bar{n}_{eff} и оптической толщиной t_{bSi} , равной средней высоте наноигл. Ранее эта расчетная методика применялась нами для моделирования оптических свойств тандемных структур перовскит/кремний с межслоем b-Si [7].

Используем приближение Брюггемана (Bruggeman) для вычисления \bar{n}_{eff} двухкомпонентной среды воздух/кремний [20]:

$$(1-f)\frac{\bar{n}_{\rm eff}^2 - \bar{n}_{\rm Si}^2}{\bar{n}_{\rm eff}^2 + 2\bar{n}_{\rm Si}^2} + f\frac{\bar{n}_{\rm eff}^2 - \bar{n}_{\rm air}^2}{\bar{n}_{\rm eff}^2 + 2\bar{n}_{\rm air}^2} = 0,$$
(1)

где f – объемная доля кремния в слое b-Si, \bar{n}_{Si} и \bar{n}_{air} – комплексные показатели преломления кремния и воздуха, соответственно.

В случае многослойной структуры матрица переноса для *j*-го слоя с толщиной *t_i* по методу ТММ задается как [17]:

$$M_j = \begin{pmatrix} \cos\delta_j & i\sin\delta_j/\gamma_j \\ i\gamma_j\sin\delta_j & \cos\delta_j \end{pmatrix},$$
 (2)

где $\delta_j = \frac{2\pi}{\lambda} (\bar{n}_j t_j \cos \theta_j)$, $\gamma_j = \bar{n}_j \cos \theta_j$, $\bar{n}_j = n_j + ik_j$, n_j и k_j – соответственно действительная и мнимая части комплексного показателя преломления *j*-го слоя, λ – длина волны излучения, θ_j – угол прохождения света в *j*-м слое.

Общая матрица *M*_{total} всей рассматриваемой структуры рассчитывается как произведение матриц воздуха, слоя b-Si и кремниевой подложки:

$$M_{\text{total}} = M_{\text{air}} M_{\text{bSi}} M_{\text{Si}}.$$
 (3)

С учетом элементов матрицы *M*_{total} выражение коэффициента отражения, усредненного по компонентам *s*- и *p*-поляризации, выглядит следующим образом [7]:

$$R = \left| \frac{\cos \delta_{\rm bSi} (1 - \gamma_{\rm Si}) + i \sin \delta_{\rm bSi} (\gamma_{\rm bSi} - \gamma_{\rm bSi})}{\cos \delta_{\rm bSi} (1 + \gamma_{\rm Si}) + i \sin \delta_{\rm bSi} (\gamma_{\rm Si} - \gamma_{\rm bSi})} \right|^2, \tag{4}$$

где $\delta_{bSi} = \frac{2\pi}{\lambda} (\bar{n}_{eff} t_{bSi} \cos \theta_{bSi}), \gamma_{bSi} = \bar{n}_{eff} \cos \theta_{bSi}, \gamma_{Si} = \bar{n}_{Si} \cos \theta_{Si}, a$ углы θ_{b-Si} и θ_{Si} определяются из закона Снеллиуса

 $\bar{n}_{air} \sin \theta = \bar{n}_{eff} \sin \theta_{bSi}$, $\bar{n}_{eff} \sin \theta_{bSi} = \bar{n}_{Si} \sin \theta_{Si}$.

Таким образом, оптическое поведение слоя b-Si определяется всеми физическими параметрами: длиной волны, углом падения излучения, толщиной слоя b-Si, а также комплексными показателями преломления кремния и слоя b-Si. В расчетах мы использовали зависящие от длины волн экспериментальные данные показателей преломления кристаллического кремния [21].

4. Результаты и их обсуждение

На рис.2 представлены SEM-микрофотографии и трехмерная схематическая модель топографии слоя b-Si (схема на вставке). Видно, что наноиглы представляют собой четко выраженные конусы с углом наклона граней 70–80° и резкой границей с монокристаллической подложкой. Боковые поверхности наноигл гладкие, без видимых наноусиков и кластеров, что обусловлено высокой



Рис.2. Типичные SEM микрофотографии поверхности (а) и поперечного сечения (b) слоя b-Si. На вставке представлено трехмерное схематическое изображение топографии слоя b-Si.

изотропностью процесса травления. Морфологические параметры слоев b-Si сохраняли однородность по всей площади кремниевых подложек, за исключением краевых областей, где подложки механически прижимались к держателю камеры RIE. В микроразмерных областях наноиглы расположены хаотично, с небольшими зазорами между ними (менее 100 нм). Диаметр основания наноигл варьируется от 165 до 205 нм, а средняя высота составляет 680 нм. Расчетное значение плотности наноигл при средних геометрических параметрах слоя b-Si составляет примерно 10^{19} см⁻², а объемной доли кремния – f = 0.11. Важно отметить, что размеры наноигл сравнимы с длиной волны излучения, что подтверждает обоснованность применения эффективного показателя преломления для описания оптических свойств слоев b-Si.

Измеренный и смоделированный спектры отражения нанотекстурированных образцов при почти нормальном падении светового излучения представлены на рис.3. Для сравнения на вставке также показан спектр отражения планарных образцов. Для всех случаев минимальная отражательная способность наблюдалась в видимом диапазоне излучения, где максимальна интенсивность солнечного света. При длинах волн свыше 1000 нм отмечалось резкое увеличение отражения, вызванное обратным рассеянием света от задней поверхности подложки [22]. При уменьшении длины волны в сторону ближнего ультрафиолетового диапазона (менее 400 нм) отражательная способность постепенно возрастала.

Сравнение представленных спектров отражения показывает, что нанотекстурированная поверхность в виде слоя b-Si значительно уменьшает отражение на всем диапазоне длин волн по сравнению с планарной поверхностью. Также наблюдается смещение минимума отражения в область более коротких длин волн, что связано с единственной разрешенной дифрагированной волной нулевого порядка, возникающей из-за более короткого периода нанотекстуры (расстояние между наноиглами) по сравнению с длиной волны падающего излучения [23, 24]. В целом результаты подтверждают, что слой b-Si, показатель преломления которого находится между показателями воздуха и кремния, действует как эффективная «оптически согласующая» среда, обеспечивая широкополосное подавление отражения.



Из рис.3 следует, что, несмотря на общую тенденцию, расчетные значения

Рис.3. Смоделированный (1) и измеренный (2) спектры отражения нанотекстурированных образцов при нормальном падении светового излучения. На вставке показан спектр отражения планарных образцов.

отражения заметно превышают экспериментальные, особенно в области сравнительно коротких длин волн. Одной из возможных причин данного расхождения является значительное диффузное рассеяние излучения в ближнем ультрафиолетовом диапазоне, вызванное конусообразной структурой слоя b-Si [22], что не учитывается в модели ТММ. Другой причиной может быть допущение об однородности показателя преломления, согласно которой предполагается, что массив наноигл b-Si представляет собой слой с одинаковыми оптическими свойствами. В реальности слой b-Si имеет градиентный профиль плотности материала по высоте, а его показатель преломления описывается более сложным выражением [25]:

$$\bar{n}_{\rm bSi}(z) = [f(z)\bar{n}_{\rm Si}^{q} + 1 - f(z)]^{1/q},$$

где q = 2/3, f(z) – объемная доля кремния в плоскостях $0 < z < t_{bSi}$ (у вершин наноигл f(0) = 0, а у оснований $f(t_{bSi}) = 1$).

На рис.4 представлены контурные карты смоделированного и измеренного углового отражения образцов в диапазоне длин волн $\lambda = 400-900$ нм при углах падения излучения $\theta = 10-80^{\circ}$. Для планарных образцов наблюдается постепенное увеличение отражения с ростом θ , начиная с 20°. В отличие от них, нанотекстурированные образцы демонстрируют превосходные антиотражающие свойства, сохраняя уровень отражения менее 10% при углах падения до 60°. Максимальное значение отражения для них достигает 25% при больших углах падения в ближней инфракрасной и ближней ультрафиолетовой областях. Стабильность углового отражения слоев b-Si объясняется как деструктивной интерференцией, так и изгибанием широкоугольного излучения ближе к



Рис.4. (a, b) Измеренная и (c) смоделированная контурные карты углового отражения (a) планарных и (b, c) нанотекстурированных образцов.

нормальному падению в каждой точке наноигл.

Подобно случаю с нормальным падением расчетные значения углового отражения отличаются от экспериментальных данных, что связано с ранее обсужденными причинами. В частности, теоретические оценки показывают, что оптическая среда с градиентным показателем преломления менее чувствительна к углу падения по сравнению с однородной средой или средой со ступенчатым показателем преломления [26]. Несмотря на это различие мы считаем, что результаты моделирования, выполненные с использованием предложенной методики, можно применять для качественного и сравнительного анализа угловой зависимости отражательной способности слоя b-Si.

В табл.1 приведены результаты измерения фотоэлектрических параметров тестовых солнечных элементов, изготовленных на основе планарных и нанотекстурированных образцов, при нормальном угле падения излучения. Как и ожидалось, наличие слоя b-Si снижает оптические потери на поверхности и повышает поглощение фотонов, что оказывает доминирующее влияние на ток короткого замыкания J_{sc} .

Образец	<i>V</i> _{oc} , мВ	J _{sc} , мА см ⁻²	FF	PCE, %
Планарный	626	34.1	0.796	17.0
Нанотекстур.	627	36.3	0.795	18.1

Табл.1. Фотоэлектрические параметры солнечных элементов

На рис.5 показаны измеренные угловые зависимости J_{sc} , нормализированные относительно их значений при нормальном угле падения излучения. Видно, что для тестовых солнечных элементов с планарной и нанотекстурированной поверхностью значения $J_{sc}(\theta)/J_{sc}(0)$ уменьшились на 26 и 28%, соответственно, при изменении угла падения излучения от 0 до 80°. При этом для солнечных элементов с нанотекстурированной поверхностью угловая стабильность J_{sc} сохраняется до угла падения $\theta = 60^{\circ}$, что связано с более выраженными угловыми антиотражающими свойствами слоя b-Si. Такая всенаправленная способность к



Рис.5. Нормализированные угловые зависимости тока короткого замыкания тестовых солнечных элементов с нанотекстурированной (1) и планарной (2) поверхностями.

светопоглощению особенно важна для стационарных (без систем слежения за солнцем) фотовольтаических станций, обеспечивая более эффективную генерацию электроэнергии в утренние и вечерние часы.

5. Заключение

Моделирование методом матрицы переноса и экспериментальные измерения подтверждают, что слои черного кремния (b-Si) обладают низким уровнем отражения – менее 10% при углах падения светового излучения до 60°, а максимальное отражение не превышает 25% даже при углах до 80°. Это связано с деструктивной интерференцией широкоугольных волн и перенаправлением траектории излучения ближе к нормальному падению внутрь слоя b-Si. В результате солнечные элементы с нанотекстурированной поверхностью демонстрируют высокую стабильность тока короткого замыкания при значительных отклонениях угла падения излучения. Полученные данные подтверждают перспективность использования слоев b-Si в солнечных элементах и стационарных фотовольтаических станциях на их основе для эффективной генерации электроэнергии в утренние и вечерние часы, а также в условиях рассеянного света.

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

ЛИТЕРАТУРА

- 1. A.A. Fashina, M.G.Z. Kana, W.O. Soboyejo. J. Mater. Res., 30, 904 (2015).
- 2. M.S. Kim, J.H. Lee, M.K. Kwak. Int. J. Precis. Eng. Manuf., 21, 1389 (2020).
- 3. **G. Ayvazyan**. Black Silicon: Formation, Properties, and Application. Cham, Switzerland: Springer, 2024.
- B. Iandolo, I. Mizushima, R.S. Davidsen, P.T. Tang, O. Hansen. Jap. J. Appl. Phys., 57, 08RH01 (2018).
- 5. J.Y.-H. Chai, B.T. Wong, S. Juodkazis. Mater. Today Energy, 18, 100539 (2020).
- 6. M. Otto, M. Algasinger, H. Branz, et al., Adv. Opt. Mater., 3, 147 (2015).
- 7. G. Ayvazyan, F. Gasparyan, V. Gasparian. Opt. Mater., 140, 113879 (2023).
- 8. G. Kulesza-Matlak, M. Szindler, et al., Opto-Electron. Rev., 33, e152685 (2025).
- F. Atteia, J.L. Rouzo, L. Denaix, D. Duché, G. Berginc, J.J. Simon, L. Escoubas. Mater. Res. Bull., 131, 110973 (2020).
- 10. C.-H. Hsu, S.-M. Liu, W.-Y. Wu, et al., Arab. J. Chem., 13, 8239 (2020).
- M.V. Katkov, G.Y. Ayvazyan, V.R. Shayapov, M.S. Lebedev. J. Contemp. Phys., 55, 16 (2020).
- 12. A. Miakonkikh, V. Kuzmenko. Nanomaterials, 14, 945 (2024).
- 13. Z. Zhao, Z. Zhang, J. Jing, et al., APL Mater., 11, 021107 (2023).
- G. Ayvazyan, K. Ayvazyan, L. Hakhoyan, X. Liu. Phys. Status Solidi RRL, 18, 2300410 (2024).
- 15. K. Han, C. Chen. Nanomaterials, 4, 87 (2014).
- 16. M. Kralik, M. Hola, S. Jurecka. Communications, 21, 53 (2019).
- 17. M. Bellingeri, A. Chiasera, I. Kriegel, F. Scotognella. Opt. Mater., 72, 403 (2017).
- 18. A.A. Elsayed, T.M. Sabry, F. Marty, T. Bourouina, K. Khalil. Opt. Express, 26, 13443

(2018).

- 19. T. Rahman, S.A. Boden. IEEE J. Photovolt., 7, 1556 (2017).
- 20. S. Zandi, M. Razaghi. Sol. Energy, 179, 298 (2019).
- E.D. Palik. Handbook of Optical Constants of Solids. San Diego, USA, Academic Press, 1985.
- 22. G. Ayvazyan, H. Dashtoyan, L. Hakhoyan. Phys. Status Solidi RRL, 19, 2400235 (2025).
- J.W. Leem, J.S. Yu, D.-H. Jun, J. Heo, W.-K. Park. Sol. Energy Mater. Sol. Cells, 127, 43 (2014).
- E.E. Perl, W.E. McMahon, R.M. Farrell, S.P. DenBaars, J.S. Speck, J.E. Bowers. Nano Lett., 14, 5960 (2014).
- 25. S. Kim, G.S. Jeong, N.Y. Park, J.-Y. Choi. Micromachines, 12, 119 (2021).
- M. Chen, H. Chang, A.S.P. Chang, S.-Y. Lin, J.-Q. Xi, E.F. Schubert. Appl. Opt., 46, 6533 (2017).

ՍԵՎ ՍԻԼԻՑԻՈՒՄԻ ԱՆԿՅՈՒՆԱՑԻՆ ԱՆԴՐԱԴԱՐՁՄԱՆ ՄՈԴԵԼԱՎՈՐՈՒՄԸ ԵՎ ՓՈՐՁՆԱԿԱՆ ՀԵՏԱԶՈՏՈՒԹՅՈՒՆԸ

Գ.Ե. ԱՅՎԱՉՅԱՆ, Մ.Վ. ԿԱՏԿՈՎ, Լ.Մ. ԼԱԽՈՅԱՆ

Ներկայացված են ռեակտիվ իոնային խածատմամբ ձևավորված սև սիլիցիումի (b-Si) շերտերի անկյունային անդրադարձման հետազոտման արդյունքները։ Մատրիցային փոխանցման մեթոդով իրականացված հաշվարկները և փորձարարական չափումները հաստատում են b-Si-ի գերազանց հակաանդրադարձման հատկությունը լուսային ձառագայթների մինչև 60° անկման անկյունների դեպքում։ Դա ապահովում է արևային էլեմենտների կարձ միացման հոսանքի կայունությունը լայն անկյունային տիրույթում, ինչը հատկապես կարևոր է ցերեկային և ամպամած եղանակին անշարժ ֆոտովոլտային կայանների արդյունավետ շահագործման համար։

MODELING AND EXPERIMENTAL STUDY OF BLACK SILICON ANGULAR REFLECTION

G.Y. AYVAZYAN, M.V. KATKOV, L.M. LAKHOYAN

The study presents the results of angular reflection analysis of black silicon (b-Si) layers formed through reactive ion etching. Calculations using the transfer matrix method and experimental measurements confirm the excellent antireflective properties of b-Si at light incidence angles of up to 60°. This ensures the stability of the short-circuit current in solar cells across a wide angular range, which is particularly important for the efficient operation of stationary photovoltaic stations during daytime and under cloudy conditions.

Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.115–120 (2025)

УДК 541; 539.192 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-115

СЛАБЫЕ УДАРНЫЕ ВОЛНЫ В РЕАКТОРАХ СО СФЕРИЧЕСКОЙ СИММЕТРИЕЙ ПРИ ОКИСЛЕНИИ ПРОПАНА: ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ДОКАЗАТЕЛЬСТВО НАЛИЧИЯ ОСОБОЙ ТОЧКИ ТИПА «СЕДЛО» В ЦЕНТРЕ РЕАКТОРА

Г.Н. САРГСЯН^{*}

Институт химической физики им. А.Б. Налбандяна НАН Армения, Ереван, Армения

*e-mail: garnik@ichph.sci.am

(Поступила в редакцию 6 ноября 2024 г.)

Исследовано фазовое пространство низкотемпературного окисления пропана в сферическом реакторе с точки зрения присутствия особых точек посредством регистрации импульсов светоизлучения, возникающего вследствие рождения в приповерхностном слое реактора слабых ударных волн. Для объяснения явления используются результаты применения известного автомодельного метода для утверждения того, что в центре реактора из-за схождения слабой ударной волны к центру реактора образуется особая точка типа «седло». Свойство слабой ударной волны отражаться от поверхности, а также от особой точки «седло» приводит к ситуации, когда и периферия и центр реактора отражают слабую ударную волну. В этих условиях, как правило, существуют замкнутые траектории, на которые наматывается траектория ударной волны. Вследствие этого становится возможным регистрировать излучение ударной волны, возникающей в горючей смеси. Приводится обоснование возможности экспериментальным путем регистрировать слабые ударные волны в реакторе.

1. Введение

Исследование динамических режимов протекания цепных реакций низкотемпературного окисления органических соединений важно как с точки зрения безопасности химических технологий, так и с целью нахождения эффективных режимов проведения химических процессов. Часто присутствие активных центров на поверхности реакционного сосуда, в частности, отрицательных ионов, может привести к возникновению слабых ударных волн [1], представляющих опасность с точки зрения нарушения стабильной работы реактора. Возникновение слабых ударных волн в процессах окисления органических веществ, как доказано нами [1], обусловлено быстрым превращением промежуточного продукта H_2O_2 в молекулы озона, причиной которого является наличие у поверхности реактора отрицательных ионов хлора. Отрицательные ионы хлора путем передачи электрона инициируют цепь ион-молекулярных реакций, в результате чего молекулы H_2O_2 превращаются в молекулы озона, быстрый распад которых выделяет большое количество энергии. В результате этого возникает поток газа, переходящий в слабую ударную волну.

Надо отметить, что для решения подобных задач очень важно, наряду с экспериментальными исследованиями, использовать теоретические математические методы моделирования, которые позволяют находить фазовые траектории системы и устанавливать закономерности их развития. В литературе известны работы [2, 3], описывающие исследования различных динамических режимов при окислении органических соединений в зависимости от массы или энергии обмена в реакторе и внешних факторов, имеющих воздействие на реакционную среду. Также известны работы [3–11], где анализируется развитие сложных цепных процессов во времени путем нахождения траекторий в фазовом пространстве в зависимости от присутствия особых точек. В частности, в работах [4–10] исследованы многие примеры решения задач газовой динамики и свойства слабых ударных волн. Представляет интерес работа [3], в которой при исследовании фазового пространства низкотемпературного окисления ацетальдегида найдены особые точки «неустойчивый узел» и «седло», вследствие чего динамика системы приобретает осциллирующий характер, так как «неустойчивый узел» окружен замкнутой траекторией.

Целью настоящей работы являлось исследование условий проведения реакций низкотемпературного окисления органических соединений на примере пропана в эффективных и одновременно безопасных режимах. В работе рассматриваются возможные явления в сферическом реакторе, если в приповерхностном слое сферического реактора вследствие гетерогенно-гомогенных реакций рождается слабая ударная волна и стремится к центру реактора. Исходя из свойств слабых ударных волн, фронт которых имеет толщину $\sim 10^{-4}$ см [10], они могут отражаться от поверхности подобно волнам Римана [10]. Также известно, что слабая ударная волна, обладающая сферической симметрией, может создать в центре сферической газовой среды особую точку «седло», которая будет отражать фронт слабой ударной волны к стенке реактора. Поэтому в работе для объяснения наших экспериментальных данных по регистрации сильных пульсаций светоизлучения из реактора рассматривается случай с наличием в реакционной среде слабых ударных волн со сферической симметрией, так как для рождения таких фронтов необходимо меньше энергии. В сферических реакторах эти волны могут создавать замкнутые траектории, что позволит их регистрировать.

2. Описание эксперимента

Экспериментальная установка представляет собой стеклянный шар из приосевого стекла объемом 500 см³, помещённый в печь из огнеупорного кирпича, в которой непрерывно циркулирует горячий воздух. Это приводит к поддержанию указанной температуры, а минимальная величина инфракрасного излучения обеспечивается за счет охлаждения нагревателей печки выдуванием воздуха. Наблюдение за развитием процесса производится путем регистрации излучения реакционной смеси в диапазоне от инфракрасного до ультрафиолета. Между фотоумножителем и стенкой печи помещается цилиндр с водяным охлаждением, имеющий отверстие диаметром 1 см, что препятствует нагреву фотоумножителя.

Сначала реактор заполняется смесью пропан + воздух и в статических условиях при температуре стенок реактора T = 600 К. При непрерывном фиксировании светового потока из реактора примерно через 180–210 с наблюдаются два пика излучения, что указывает на инициацию процесса. После этого смесь из реактора откачивается форвакуумным насосом, а затем реактор продувается по-

током воздуха. Было установлено, что при впуске смеси в реактор по мере увеличения давления наблюдается серия интенсивных импульсов светоизлучения сначала на короткое время, а потом при интенсификации реакции на более длительное время. И наряду со слабыми импульсами, характерными для холодного пламени наблюдаются мощные пульсации, источником которых могут быть только слабые ударные волны, рождающиеся вследствие распада озона. Обработка экспериментальных данных приведена в работе [1].

3. Условия образования особой точки типа «седло» в центре сферического реактора

Известно, что при решении задач газодинамики, которые часто встречаются в физической химии, в большинстве случаев используется автомодельное приближение, суть которого заключается в использовании метода подобия, а именно, в использовании безразмерных переменных, что во многих случаях позволяет уменьшить число переменных и облегчает решение сложных задач.

Известны работы [4, 9], в которых авторы показали, что при соблюдении определенных условий при схождении ударных волн к центру сферически-симметричной газовой среды в центре среды образуется особая точка «седло», в которой система не может находится, так как траектории на фазовой плоскости обходят эту точку.

Не вдаваясь в подробности сложной математической задачи, приводим из этих работ условия, при которых в центре сферически-симметричной газовой среды при схождении сферически-симметричной ударной волны к центру образуется особая точка «седло». При этом нужно знать величины характеризующих параметров, таких как параметр k – так называемый показатель автомодельности, значение которого при известном значении γ можно найти в работе [9], γ – значение отношения теплоемкостей газовой среды и параметр μ равняется k - 1.

При этом допустимым является отрезок, имеющий физический смысл, а подтверждением присутствия особой точки типа «седло» является условие:

$$0 \le \mu \le \frac{2\gamma}{\left(\sqrt{\gamma} + \sqrt{2}\right)^2}.$$
(1)

В случае, если параметр $\mu = k - 1 = 0.38$, значение которого взято из работы [9], и полученное путем усреднения $\gamma = 1.37$, удовлетворяется условие

$$\mu_3 < \mu < \mu_1. \tag{2}$$

Это подтверждает наличие особой точки «седло».

В условиях наших экспериментов расчет дает результаты для $\mu 0.274 < 0.38 < 0.412$. В случае, если $\gamma = 1.38$ получается для $\mu 0.279 < 0.38 < 0.412$, что также удовлетворяет условию существования в реакторе особой точки типа «седло», так как другое условие $\gamma < \gamma_1 = 1.87$ также соблюдается.

4. Регистрация излучения слабых ударных волн, возникающих в горючей среде реактора

Как известно, слабые ударные волны очень схожи своими характеристиками с волнами сжатия Римана [10] и поэтому слабая ударная волна отражается от твердой поверхности по закону звуковых волн. Для регистрации светоизлучения слабой ударной волны необходимо, чтобы она существовала определенное время, так как все приборы должны поглощать определенное количество фотонов, чтобы почувствовать световой импульс.

В условиях нашего эксперимента при окислении пропана $\gamma = 1.37$, что допускает образование в центре реактора особой точки типа «седло». Это обстоятельство может быть причиной образования замкнутой траектории для слабой ударной волны и его достаточно длительного существования, необходимого для регистрации.

На рис. 1 приводится такая возможность и находится замкнутая траектория для классического случая, если в центре реактора расположена точка «седло», а поверхность реактора отражает сферическую слабую ударную волну к центру сферического реактора.

Надо подчеркнуть, что появление особой точки «седло» в центре реактора обусловлено появлением в среде сферической ударной волны, сходящейся в центр. После отражения в сторону поверхности реактора «седло» растворяется в газовой среде. После отражения фронта ударной волны от стенки и схождении к центру реактора «седло» образуется снова. Так как и ударный фронт и точка «седло» являются тонкими мембранами, то при отсутствии натиска слабой ударной волны «седло» мгновенно растворится в газовой среде. Этот процесс будет повторяться до уничтожения ударной волны. Контурные диаграммы на рис. 2а–2d, полученные программой МАТСАD 2001i, для классического случая точки «седло» линиями показывают траектории фронта симметричной слабой ударной



Рис.1. (a–d) Контурные диаграммы проекции на плоскости особой точки типа «седло», формирующейся при стремлении слабой ударной волны сферической симметрии к центру сферической газовой среды, в зависимости от направления удара. (e) Замкнутая траектория слабой ударной волны, формирующейся в реакторе.

волны при приближения к центру сферически-симметричной газовой среды. Обычной стрелкой показано направление удара фронта слабой ударной волны, а жирная стрелка показывает направление, куда она движется по этим траекториям и в каком месте поверхности реактора она столкнется с поверхностью. В этот момент точка «седло» перестанет существовать. На рис.1а видно, что фронт окажется на окраине в правом верхнем углу. На рис.1b видно, что после отражения фронт ударной волны, двигающейся к центру, создаст новую точку «седло», а сам окажется в нижней части реактора, и процесс будет продолжаться. Таким образом, в конце концов, ударный фронт будет возвращаться к исходной позиции и весь процесс будет повторяться.

Так появится замкнутая траектория, представленная на рис.1е, и движение по этой траектории фронта слабой ударной волны достаточно долгое время позволит регистрировать излучение фронта слабой ударной волны.

5. Заключение

Из результатов, полученных экспериментальным путем, доказывается справедливость применения автомодельного метода для описания сложных задач газодинамики.

В работе впервые рассматривается задача схождения сферически-симметричной слабой ударной волны, образованной у стенок реакционного сосуда в результате гетерогенно-гомогенных процессов, к центру реактора. А именно, в случае наличия на стенке реактора комплексов вода + отрицательный ион галогена вследствие перехода электрона к промежуточному продукту диоксида водорода рождается цепь ион-молекулярных реакций, приводящих к рождению молекул озона. Быстрый самораспад озона сильно подогревает окружение точки вализы поверхности, рождая сферически-симметричную слабую ударную волну, сходящуюся к центру. При определенных условиях, приведенных в статье, это волна рождает в центре сферически-симметричной газовой среды особую точку «седло». «Седло» создает вокруг себя определенную симметрию траекторий движения, и слабая ударная волна, приближаясь к особой точке, отражается и уходит к поверхности сферически-симметричного реактора. При этом особая точка исчезает, так как она питается энергией сходящегося фронта слабой ударной волны. Стенка сферического реактора играет роль внешнего фактора, отражающего слабую ударную волну к центру сосуда из-за почти перпендикулярного столкновения с поверхностью, что является следствием вида близко лежащих к точке «седло» траекторий, идущих к поверхности почти перпендикулярно к касательной в точке столкновения [11].

В экспериментах непрерывно регистрируется свечение из реактора в диапазоне от инфракрасного до ультрафиолета с помощи фотоумножителя. Реакционная среда при окислении пропана исследуется в пределах общего давления от 50 до 150 Торр при температуре стенок сферически-симметричного реакционного сосуда 600 К. Сначала инициируется реакция окисления пропана. Затем реактор скачивается и выдувается потоком воздуха, после этого реактор заполняется воздухом до ~50 Торр. После чего подается пропан и наряду с ростом излучения вследствие интенсификации реакции из-за увеличения количества горючего наблюдаются также интенсивные пульсации светоизлучения, причиной которого, как показано в данной работе, являются слабые ударные волны. Излучение обеспечивается за счет реакции окисления пропана при высокой температуре фронта ударной волны, достигающей примерно 800-1000 К. При этом будут излучать как возбужденные атомы, так и метастабильные продукты реакции, такие как CO₂ и CO.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. G.N. Sargsyan, A.B. Harutyunyan. Kinetics and Catalysis, 61, 552 (2020).
- 2. P. Gray, J.F. Griffiths, S.M. Hasko, P.G. Lignola. Combustion and Flame, 43, 175 (1981).
- 3. Г.Н. Саргсян. Докл. НАН Армении, 93, 162 (1995).
- 4. G. Guderley. Luftfahrtforschung, 19, 9 (1942).
- 5. К.П. Станюкович. Неустановившиеся движения сплошной среды. Москва, Гостехиздат, 1955.
- 6. **Ф.Л. Черноусько**. ПММ 24, **5**, 885 (1960).
- 7. C. Hunter. J. Fluid Mechan., 8, 241 (1960).
- 8. **Я.Б. Зелдович.** Акустический журнал, **2**, 28 (1956).
- 9. К.В. Брушлинский. Я. М. Каждан. УМН, 18, 3 (1963).
- Б.Л Рождественский, Н.Н. Яненко. Системы квазилинейных уравнений и их приложение к газовой динамике. Москва, Наука, 1978.
- 11. А.П. Пятаков. Теория Колебаний. Москва, МГУ, 2022.

WEAK SHOCK WAVES IN REACTORS WITH SPHERICAL SYMMETRY DURING OXIDATION OF PROPANE: EXPERIMENTAL PROOF OF THE PRESENCE OF A SINGULAR POINT OF THE SADDLE TYPE IN THE CENTER OF THE REACTOR

G.N. SARGSYAN

The phase space of low-temperature propane oxidation in a spherical reactor is investigated from the point of view of the presence of special points, by recording pulses of light emission arising due to the generation of weak shock waves in the surface layer of the reactor. To explain the phenomenon, the results of the well-known self-similar method are used to assert that in the center of the reactor, due to the convergence of a weak shock wave to the center of the reactor, a special point of the type "saddle" is formed. The property of a weak shock wave to reflect from the surface, as well as from a singular point "saddle", leads to a situation where both the periphery and the center of the reactor reflect a weak shock wave. Under these conditions, as a rule, there are closed trajectories on which the trajectory of the shock wave is wound. As a result, it becomes possible to record the radiation of a shock wave arising in a combustible mixture. The substantiation of the possibility of experimentally recording weak shock waves in a reactor is given. Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.121–129 (2025) УДК 535.15 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-121

ОБНАРУЖЕНИЕ ЛЮДЕЙ С ПОМОЩЬЮ ЭЛЛИПТИЧЕСКОГО РУПОРНОГО ЭЛЕМЕНТА В ТЕПЛОВОЙ ИНФРАКРАСНОЙ ОБЛАСТИ

А.Е. МАРТИРОСЯН¹, П.Г. МУЖИКЯН^{1*}, В.А. МАРТИРОСЯН², Р.Б. КОСТАНЯН¹

¹Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения ²Paris-Saclay University, Orsay, France

*e-mail: pmuzhikyan@gmail.com

(Поступила в редакцию 14 октября 2024 г.)

Представлено применение эллиптического рупорного элемента для фокусировки излучения от относительно горячих объектов в окружающей среде на тепловой инфракрасный датчик. С помощью теоретических расчетов получены значения концентрации излучения в рупорном элементе при нормальном падении лучей относительно входного сечения и однократном отражении от внутренней поверхности. Устройство с рупорным элементом и тепловым инфракрасным датчиком обеспечивает обнаружение человека на большом расстоянии (16 м) с широким полем зрения в горизонтальном направлении (100°). Установка может функционировать как самостоятельно, так и вместе с другими приборами мониторинга внутреннего и внешнего сопредельного пространства.

1. Введение

В последние годы для обнаружения людей и относительно горячих объектов широко используются датчики, работающие в тепловом инфракрасном (4-14 мкм) спектральном диапазоне. Пассивные инфракрасные датчики (PIR) обычно обнаруживают людей на расстоянии 6–12 м [1]. В работе [2] представлена реализация беспроводной распределенной пироэлектрической сенсорной системы для отслеживания движений человека. Методика отслеживания людей с помощью массива PIR-сенсоров, распределенных в окружающей среде, описана в [3]. В работе [4] разработан модуль сбора данных, состоящий из двух пар PIR-сенсоров, сдвоенные чувствительные элементы которых расположены ортогонально. В стремлении создать недорогое решение для обнаружения неподвижных людей в закрытом пространстве был разработан новый подход к установке PIR-датчика на движущейся платформе [5]. Высокооптимизированная модель многослойного персептрона с входными данными о температуре от термодатчика описана в работе [6]. Тепловые инфракрасные датчики широко используются в качестве триггера для обнаружения людей и других объектов в различных устройствах безопасности [7]. Методы, основанные на компьютерной обработке изображений и видео материалов в тепловой инфракрасной области, широко применяются для слежения за людьми и объектами, ночного видения и систем безопасности [8–10].

Насколько нам известно, системы с рупорным элементом с эллиптической апертурой сейчас используются в СВЧ технике и акустике. В работе [11] для систем медицинского мониторинга предложена новая широкополосная (2–6 ГГц) эллиптическая двухгребневая рупор-антенна, напечатанная на 3D-принтере и заполненная высокодиэлектрическим материалом. Конструкция рупорного элемента с эллиптической апертурой в К-диапазоне, который может освещать прямоугольную отражающую решетку эллиптическим лучом, представлена в работе [12]. Уникальный высокочастотный рупор Eighteen Sound эллиптической формы XT120 разработан [13] для использования в звуковых системах высшего качества.

В работе [14] проведены исследования по определению фокусирующих свойств конических рупорных элементов в оптическом диапазоне. В работах [15, 16] для обнаружения человека на большом расстоянии применяется миниатюрная система детектирования с коническим рупорным элементом и тепловым инфракрасным датчиком. Комплексная теория усиления и поля зрения конического рупорного элемента для сенсорных приложений в оптическом и ТГц диапазонах представлена в работе [17].

В настоящей работе представлено устройство обнаружения людей или относительно теплых объектов с применением эллиптического рупорного элемента, который фокусирует тепловое инфракрасное излучение на соответствующий датчик.

2. Прохождение однократно отраженного луча в эллиптическом сужающемся элементе

В рамках геометрической оптики в трехмерной системе координат рассмотрим путь луча, распространяющегося параллельно оси эллиптического рупорного элемента, который падает на произвольную точку R внутренней стенки элемента и отражается от этой точки (рис.1а). Предположим, что коэффициент отражения стенки рупорного элемента стремится к 1. Затемненная область на рис.1а показывает плоскость, в которой лежат падающий и отраженный лучи. Эта плоскость пересекает плоскость поперечного сечения рупорного элемента по линии $w = \overline{RE^*}$, которая, исходя из закона отражения света, перпендикулярна касательной линии поперечного сечения стенки рупорного элемента в R.

Для определения направления отраженного луча в рупорном элементе нам необходимо найти поперечный и продольный углы наклонов стенки элемента при *R* (углы γ и μ на рис.1). Абсолютное значение поперечного угла наклона можно получить, дифференцируя уравнение эллипса $\frac{x^2}{a^2} + \frac{Y^2}{b^2} = 1$, где *X*, *Y* – координаты *R* (рис.1b):

 $\tan \gamma = \frac{\delta Y}{\delta X} = -\frac{b^2}{a^2} \frac{X}{Y} = -\frac{b^2}{a^2} \cot \alpha = -\frac{\tan^2 \varphi_2}{\tan^2 \varphi_1} \cot \alpha$

или

$$\gamma = |\arctan(-\frac{\tan^2 \varphi_2}{\tan^2 \varphi_1} \cot \alpha)|, \qquad (1)$$

где $a = \overline{OA} \tan \varphi_1$ и $b = \overline{OA} \tan \varphi_2$ а φ_1 и φ_2 – полууглы при вершине A в горизонтальном и вертикальном направлениях, соответственно (рис.1a).



Рис.1. (а) Трехмерное изображение траектории луча, нормально падающего (жирная стрелка) относительно входного сечения эллиптического рупорного элемента на произвольную точку R внутренней стенки и отраженного по линии RE на край его выходного окна. Плоскость, где лежат падающий и отраженный лучи, слегка затемнена. Большой пунктирный эллипс представляет собой поперечное сечение рупорного элемента в точке R, которое характеризуется большой 2*a* и малой 2*b* осями эллипса. Система координат x', y', z' с началом в точке O описывает направления *a*, *b* и продольную ось рупорного элемента, соответственно. Сплошной эллипс с центром в точке O₁ показывает выходное окно рупорного элемента с большой 2*a*₁ и малой 2*b*₁ осями. Маленький пунктирный эллипс и E^{*} показывают проекции выходного окна рупорного элемента и точки *E* на плоскость x', y'; φ_1 и φ_2 – полуутлы при вершине A в горизонтальном и вертикальном направлениях; μ – угол между направлением падающего луча и стенкой рупорного элемента в точке R. (b) Эллиптическая плоскость поперечного сечения рупорного элемента в точке R, где α и α_0 – полярные углы, характеризующие положение точек R и E (или E^{*}).

Для определения продольного угла наклона рассмотрим бесконечно малое уменьшение длины рупорного элемента Δz , которое приводит к линейному уменьшению Δw и радиуса эллипса Δr в точке *R* (рис.1b):

$$\Delta r = \frac{\Delta z \tan\varphi_1 \tan\varphi_2}{\sqrt{\tan^2\varphi_1 \sin^2\alpha + \tan^2\varphi_2 \cos^2\alpha}}.$$
(2)

Здесь принято во внимание, что $r = \overline{OR} -$ радиус эллипса в точке R выражается в полярных координатах как:

$$r = \frac{ab}{\sqrt{a^2 \sin^2 \alpha + b^2 \cos^2 \alpha}} = \frac{z \tan \varphi_1 \tan \varphi_2}{\sqrt{\tan^2 \varphi_1 \sin^2 \alpha + \tan^2 \varphi_2 \cos^2 \alpha}}.$$
(3)

Ввиду того, что при бесконечно малом изменении *z* направление поперечной касательной практически не меняется ($\gamma \approx \text{const}$); треугольник, образованный Δr , Δw и углом σ (жирные линии на рис.1b), является прямоугольным. Следовательно, мы имеем:

$$\Delta w = \Delta r \cos \sigma = \frac{\Delta z \tan \varphi_1 \tan \varphi_2 \cos \sigma}{\sqrt{\tan^2 \varphi_1 \sin^2 \alpha + \tan^2 \varphi_2 \cos^2 \alpha}} = \frac{\Delta z \tan \varphi_1 \tan \varphi_2 \sin(\alpha + \gamma)}{\sqrt{\tan^2 \varphi_1 \sin^2 \alpha + \tan^2 \varphi_2 \cos^2 \alpha}}, \quad (4)$$

где принято во внимание, что $\sigma = \frac{\pi}{2} - (\alpha + \gamma).$

Теперь находим значение угла μ:

$$\tan \mu = \frac{\Delta w}{\Delta z} = \frac{\tan \varphi_1 \tan \varphi_2 \sin(\alpha + \gamma)}{\sqrt{\tan^2 \varphi_1 \sin^2 \alpha + \tan^2 \varphi_2 \cos^2 \alpha}}.$$
 (5)

Рассмотрим три возможных случая прохождения однократно отраженных лучей в эллиптическом рупорном элементе: отраженный луч проходит через выходное окно; отраженный луч не достигает выходного окна, а попадает на внутреннюю стенку рупорного элемента; отраженный луч попадает на край выходного окна.

Мы можем найти максимальное (или критическое) расстояние от вершины конуса $z = \overline{AO}$ в данном эллиптическом рупорном элементе, когда луч после однократного отражения от внутренней стенки все еще достигает края выходного окна в точке *E* (рис.1а). Основываясь на законе синусов в ΔORE^* , мы можем написать (рис.1b):

$$\frac{r_0}{\sin\sigma} = \frac{r}{\sin \angle OE^*R} = \frac{r}{\sin[\pi - (\alpha_0 + \alpha + \sigma)]},\tag{6}$$

где $r_0 = \overline{O_1 E} = \overline{OE^*}$ — радиус выходного окна рупорного элемента в точке Е. Его значение в полярных координатах выражается как

$$r_0 = \frac{z_0 \tan\varphi_1 \tan\varphi_2}{\sqrt{\tan^2\varphi_1 \sin^2\varphi_0 + \tan^2\varphi_2 \cos^2\varphi_0}},\tag{7}$$

где $z_0 = \overline{O_1 A}$ — расстояние между выходным окном рупорного элемента и вершиной конуса А.

Как было показано выше $\sigma = \frac{\pi}{2} - (\alpha + \gamma)$, и, следовательно, уравнение (6) можно переписать в виде

$$\frac{r_0}{\cos(\alpha+\gamma)} = \frac{r}{\cos(\alpha_0-\gamma)}$$

или

$$z_{\rm n} = \frac{\cos(\alpha_0 - \gamma)\sqrt{\tan^2 \varphi_1 \sin^2 \alpha + \tan^2 \varphi_2 \cos^2 \alpha}}{\cos(\alpha + \gamma)\sqrt{\tan^2 \varphi_1 \sin^2 \alpha_0 + \tan^2 \varphi_2 \cos^2 \alpha_0}}.$$
(8)

Здесь значения r и r_0 подставлены из уравнений (3) и (7), а $z_n = z/z_0$ – длина z в нормированных единицах.

Снова используя закон синусов в ∆ORE*, мы имеем:

$$\frac{w}{\sin(\alpha+\alpha_0)} = \frac{r_0}{\cos(\alpha+\gamma)} = \frac{z_0 \tan\varphi_1 \tan\varphi_2}{\cos(\alpha+\gamma)\sqrt{\tan^2\varphi_1 \sin^2\alpha_0 + \tan^2\varphi_2 \cos^2\alpha_0}}.$$
(9)

В прямоугольном треугольнике ΔERE^* на рис.1a $w = \overline{EE^*} \cot\theta = \overline{OO_1} \cot\theta = (z - z_0)\cot\theta$. Исходя из этого, уравнение (9) может быть переписано как

$$w_{\rm n} = (z_n - 1)\cot\theta = \frac{\tan\varphi_1 \tan\varphi_2 \sin(\alpha + \alpha_0)}{\cos(\alpha + \gamma)\sqrt{\tan^2\varphi_1 \sin^2\alpha_0 + \tan^2\varphi_2 \cos^2\alpha_0}},\tag{10}$$

где $w_n = w/z_0$. Принимая во внимание, что на наклонной поверхности угол отражения представляется как $\theta = \frac{\pi}{2} - 2\mu$ [14], уравнение (10) можно представить в следующей форме:

$$z_n = \frac{\tan\varphi_1 \tan\varphi_2 \sin(\alpha + \alpha_0)}{\tan^2 \varphi_1 \sin^2 \varphi_0 + \tan^2 \varphi_2 \cos^2 \alpha_0} + 1.$$
(11)

Ввиду того, что левые части уравнений (8) и (11) идентичны, правые части также должны быть равны друг другу:

$$\frac{(\sqrt{1-k^2}\cos\gamma+k\sin\gamma)\sqrt{\sin^2\alpha+f^2\cos^2\alpha}}{\cos(\alpha+\gamma)\sqrt{k^2+f^2(1-k^2)}} = \frac{\tan\varphi_2(\sqrt{1-k^2}\sin\alpha+k\cos\alpha)}{\tan^2\mu\cos(\alpha+\gamma)\sqrt{k^2+f^2(1-k^2)}} + 1,$$
(12)

где $k = \sin \alpha_0$ и $f = \frac{\tan \varphi_2}{\tan \varphi_1}$. Уравнение (12) решается численно относительно k, что позволяет найти α_0 в зависимости от углов φ_1 , φ_2 и α при вершине рупорного элемента.

Подставляя α_0 в уравнение (8) или (11), мы находим зависимость значения z_n от этих же величин. Подчеркнем, что длина z_n определяет нормированное критическое расстояние между точкой падения луча и вершиной эллиптического рупорного элемента для заданных ϕ_1 , ϕ_2 и α : на этом и более коротких расстояниях однократно отраженные лучи (наряду с прямо падающими на выходное окно) проходят через выходное окно рупорного элемента. В случае больших расстояний отраженный луч не достигает выходного окна и снова отражается от стенки элемента.

На рис.2 представлена зависимость z_n от α для разных случаев горизонтального полуугла φ_1 вершины рупорного элемента при $\varphi_2 = 22.5^\circ$. Подчеркнем, что согласно анализу [14], угол 22.5° является минимальным, при котором нормально падающие и многократно отраженные (более одного раза) лучи не достигают выходного окна рупорного элемента. Привлекает внимание то, что профили z_n практически идентичны при $\alpha > 30^\circ$.



Рис.2. Зависимость z_n от а при $\varphi_1 = 35^\circ$, $\varphi_2 = 22.5^\circ$ (кривая *1*); $\varphi_1 = 40^\circ$, $\varphi_2 = 22.5^\circ$ (кривая *2*); $\varphi_1 = 45^\circ$, $\varphi_2 = 22.5^\circ$ (кривая *3*).

3. Фокусирующие свойства эллиптического рупорного элемента

Формирование критической кривой на стенке рупорного элемента и полезной площади в плоскостях его поперечных сечений при различных α представлено на рис.3. Можно сказать, что все лучи с заданным α , падающие параллельно оси элемента на поверхность затемненного сектора (с бесконечно малым углом $\delta\alpha$) при критической точке *R* обязательно попадают в выходное окно рупорного элемента либо напрямую, либо после однократного отражения.

Учитывая уравнение (3) и принимая во внимание, что при $\delta \alpha \rightarrow 0$ затемненный сектор можно рассматривать как треугольник, затемненная площадь вычисляется по формуле

$$\delta S = \frac{1}{2}r \times r\delta\alpha = \frac{z^2 \tan^2 \varphi_1 \tan^2 \varphi_2 \,\delta\alpha}{2(\tan^2 \varphi_1 \sin^2 \alpha + \tan^2 \varphi_2 \cos^2 \alpha)}.$$
(13)



Рис.3. Формирование полезной площади (штрихованная область) из бесконечно малых плоскостей сечений эллиптического рупорного элемента в пределах $0 \le \alpha \le \pi/2$. Номинальные длины радиусов зависят от угла α , а их бесконечное число образует полезную площадь рупорного элемента в плоскостях поперечного сечения и критическую линию (жирная кривая) на его внутренней стенке. Пунктирный полуэллипс показывает сечение рупорного элемента в точке *R* на расстоянии $z = \overline{OA}$ от его вершины. Сплошной полуэллипс показывает положение выходного окна элемента. Затемненный сектор характеризует бесконечно малую полезную площадь рупорного элемента оказывает полезную площадь рупорного элемента.

Таким образом, общая полезная площадь *S* рупорного элемента в плоскостях поперечных сечений рассчитывается с помощью следующего интеграла:

$$S = \int_{0}^{2\pi} \frac{z^{2} \tan^{2} \varphi_{1} \tan^{2} \varphi_{2}}{2 (\tan^{2} \varphi_{1} \sin^{2} \alpha + \tan^{2} \varphi_{2} \cos^{2} \alpha)} \delta \alpha.$$
(14)

В случае нормального падения излучения на эллиптический рупорный элемент соотношение S/S_0 определяет степень фокусировки пучка, где $S_0 = \pi z_0^2 \tan \varphi_1 \tan \varphi_2 -$ площадь его выходного окна:

$$S/S_{0} = \frac{1}{2\pi} \int_{0}^{2\pi} \frac{z_{n}^{2} \tan\varphi_{1} \tan\varphi_{2}}{(\tan^{2}\varphi_{1} \sin^{2}\alpha + \tan^{2}\varphi_{2} \cos^{2}\alpha)} \delta\alpha.$$
(15)

Значения степени фокусировки падающего излучения в эллиптических рупорных элементах, исходя из расчетов по интегралу в уравнении (15), представлены в табл.1.

Горизонтальный полу-	Вертикальный полуу-	Степень фокусировки	
угол вершины эле-	гол вершины элемента	при нормальном паде-	
мента ф ₁ , град	<i>ф</i> ₂ , град	нии излучения	
35	22.5	3.87	
40	22.5	3.18	
45	22.5	3.02	

Табл.1. Аналитические значения степени фокусировки падающего излучения в эллиптических рупорных элементах

4. Эксперимент

Образец эллиптического рупорного элемента изготовлен из металлического листа с никелированной внутренней поверхностью, обеспечивающей практически полное отражение падающего излучения в тепловом инфракрасном диапазоне. Длина образца 20 мм, полууглы при вершине равны $\varphi_1 = 45^\circ$ в

горизонтальном направлении и $\varphi_2 = 22.5^{\circ}$ в вертикальном направлении. Падающее из среды на рупорный элемент тепловое излучение фокусируется на выходном окошке и попадает на модуль с температурным датчиком MLX90614.

Плата Arduino и ноутбук применяются для сбора данных и мониторинга выходных сигналов датчика в режиме реального времени. Программное обеспечение на Python было разработано для регистрации различных тепловых выбросов из окружающей среды. Таким образом, если в поле зрения эллиптического рупорного элемента попадает относительно горячий объект, система обнаружения детектирует его и отображает в виде сигнала на экране компьютера. Уровень теплового излучения объекта фиксируется по температурной шкале как дополнительный выходной сигнал относительно фона. Эксперимент проводится при комнатной температуре. При отсутствии объектов в поле зрения рупорного элемента стандартное отклонение температуры среды (фона), измеряемой системой обнаружения, находится в пределах $\pm 0.02^{\circ}$ С. Относительная ошибка эксперимента составляет $\pm 5\%$.

Профиль зависимости зарегистрированного сигнала от расстояния до человека, находящегося под прямым углом β относительно входного окна эллиптического рупорного элемента, представлена на рис.4а. На расстояниях от датчика более 2 м, когда контур человека полностью попадает в поле зрения рупорного элемента, профиль сигнала примерно соответствует закону обратной пропорциональности мощности от квадрата расстояния. Это дает возможность примерно оценить расстояние до человека при срабатывании системы безопасности. На рис.4b показана зависимость уровня регистрируемого сигнала от горизонтального и вертикального углов наблюдения человека. Отметим, что в обоих случаях изменение угла наблюдения и обнаружение сигналов осуществляется за счет движения человека в горизонтальном направлении. Для получения результатов в вертикальном направлении эллиптический рупорный элемент поворачивается на 90°, т. е. большая ось эллипса направляется вертикально.



Рис.4. (а) Зависимость уровня регистрируемого сигнала от расстояния до человека, наблюдаемого при прямом угле его регистрации ($\beta = 90^\circ$). (b) Зависимость уровня регистрируемого сигнала от угла наблюдения человека β на расстоянии 6 м от детектируемой установки; распределение по горизонтали показано сплошной линией, а по вертикали – пунктиром.

5. Заключение

В тепловом инфракрасном устройстве обнаружения человека (или относительно теплых объектов) используется эллиптический рупорный элемент, который фокусирует излучение от объекта на модуль с тепловым инфракрасным датчиком. Устройство может обнаружить человека на значительном расстоянии (16 м) и при этом имеет широкое поле зрения в горизонтальном направлении (100°) и значительное поле зрения по вертикали (60°). В отличие от конического рупорного элемента и PIR приборов, использование эллиптического элемента позволяет повысить гибкость управления характеристиками обнаружения объектов в зависимости от контролируемого помещения или окружающего пространства: дальность обнаружения человека; поле зрения в горизонтальном направлении; поле зрения в вертикальном направлении.

Таким образом, небольшое устройство с размерами 40×20×20 мм³, состоящее из эллиптического рупорного элемента и теплового инфракрасного датчика, может использоваться как отдельно, так и в составе комплексной установки мониторинга в помещении и на открытом воздухе.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке PA в рамках проекта N 1-6/IPR.

Авторы не имеют конфликт интересов.

Авторы в равной степени внесли вклад в данную работу.

ЛИТЕРАТУРА

- PIR Motion Sensor, Overview, How PIRs Work: https://learn.adafruit.com/pir-passive-infrared-proximity-motion-sensor; https://learn.adafruit.com/pir-passive-infrared-proximitymotion-sensor/how-pirs-work
- Q. Hao, D.J. Brady, B.D. Guenther, J.B. Burchett, M. Shankar, S. Feller. IEEE Sens. J. 6, 1683 (2006).
- 3. P. Zappi, E. Farella, L. Benini. IEEE Sens. J., 10, 1486 (2010).
- 4. J. Yun, S.S. Lee. Sensors 14, 8057 (2014).
- J. Andrews, M. Kowsika, A. Vakil, J. Li. 2020 IEEE/ION Position, Location and Navigation Symposium (PLANS), Portland, USA, 1295–1304, 2020.
- 6. L. Puurunen, J. Chaudhary, R. Kanth, J. Heikkonen. 2021 IEEE 7th World Forum on Internet of Things (WF-IoT), New Orlean, USA, 669–673, 2021.
- 7. 1080p Full HD Thermal Sensing Dome Security Camera PRO-1080MSD: https://www.swann.com/us/swpro-1080msd
- E.S Jeon, J.-S. Choi, J.H. Lee, K.Y. Shin, Y.G. Kim, T.T. Le, K.R. Park. Sensors, 15, 6763 (2015).
- 9. A. Nowosielski, K. Małecki, P. Forczmański, A. Smoliński, K. Krzywicki. IEEE Sens. J., 20, 9293 (2020).
- 10. M. Kristo, M. Ivasic-Kos, M. Pobar. IEEE Access, 8, 125459 (2020).
- 11. S. Sarjoghian, M. H. Sagor, Y. Alfadhl, X. Chen. IEEE Access, 7, 94977 (2019).
- M.M. Bilgic, M. Zhou, P. Meincke, A. Ericsson, E. Jørgensen, M. Lumholt. 50th European Microwave Conference, Utrecht, Netherlands, 452–455, (2021).
- 13. Eighteen Sound XT120: https://www.eighteensound.it/en/products/horn/1-0/0/XT120

- 14. V.A. Martirosyan, P.H. Muzhikyan. Appl. Opt., 60, 5382 (2021).
- 15. A.E. Martirosyan, R.B. Kostanyan, V.A. Martirosyan, P.H. Muzhikyan. Sens. Imaging, 24, 41 (2023).
- A.E. Martirosyan, R.B. Kostanyan, V.A. Martirosyan, P. H. Muzhikyan. Opt. Eng., 63, 044101 (2024).
- 17. A.E. Martirosyan, P.H. Muzhikyan, V.A. Martirosyan, R.B. Kostanyan, Sens. Imaging, 25, 28 (2024).

ՄԱՐԴԿԱՆՑ ԴԻՏԱՐԿՈՒՄԸ ԷԼԻՊՍԱՅԻՆ ԵՂՋՅՈՒՐԱՆՄԱՆ ՏԱՐՐԻ ՄԻՋՈՑՈՎ ՍՊԵԿՏՐԻ ՋԵՐՄԱՅԻՆ ԻՆՖՐԱԿԱՐՄԻՐ ՏԻՐՈՒՅԹՈՒՄ

Ա.Ե. ՄԱՐՏԻՐՈՍՅԱՆ, Պ.Հ. ՄՈՒԺԻԿՅԱՆ, Վ.Ա. ՄԱՐՏԻՐՈՍՅԱՆ, Ռ.Բ. ԿՈՍՏԱՆՅԱՆ

Հոդվածում ներկայացված է էլիպսային եղջյուրանման տարրի կիրառումը շրջապատի նկատմամբ համեմատաբար տաք առարկաների ձառագայթումը ջերմային ինֆրակարմիր սենսորի վրա կենտրոնացնելու նպատակով։ Տեսական հաշվարկների միջոցով ստացվել են եղջյուրանման տարրի ձառագայթման ֆոկուսացման արժեքներն այն դեպքի համար, երբ ձառագայթներն ընկնում են տարրի մուտքային հատույթի նկատմամբ ուղիղ անկյան տակ և անդրադառնում ներքին մակերևույթից մեկ անգամ։ Էլիպսային եղջյուրանման տարրից և ջերմային ինֆրակարմիր սենսորից կազմված սարքը ապահովում է մարդու հայտնաբերումը մեծ հեռավորության վրա (16 մ) և լայն տեսադաշտով՝ հորիզոնական հարթության մեջ (100°)։ Համակարգը կարող է գործել ինչպես ինքնուրույն, այնպես էլ այլ սարքերի հետ միասին՝ ներքին և արտաքին հարակից տարածքների մշտադիտարկման համար։

HUMAN DETECTION USING AN ELLIIPTICAL HORN ELEMENT IN THE THERMAL INFRARED REGION

A.E. MARTIROSYAN, P.H. MUZHIKYAN, V.A. MARTIROSYAN, R.B. KOSTANYAN

In the paper, we present the application of an elliptical horn to focus radiation from relatively hot objects in the environment onto a thermal infrared sensor. Using theoretical calculations, the horn gain values are obtained for rays that are normally incident on the input cross-section and singly reflected from the inner surface of the horn. A device with an elliptical horn and a thermal infrared sensor provides human detection at a long distance (16 m) with a wide field of view in the horizontal direction (100°). The system can operate independently or with other devices to monitor the internal and external adjacent areas.

Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.130–138 (2025) УДК 548.732 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-130

РЕНТГЕНОВСКАЯ ДИНАМИЧЕСКАЯ ДИФРАКЦИЯ НА ДВУХ ЩЕЛЯХ В ПРОХОДЯЩЕМ ПУЧКЕ

А.П. АЙВАЗЯН, М.К. БАЛЯН^{*}, С.А. ПЕТРОСЯН, В.П. МКРТЧЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: mbalyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 16 октября 2024 г.)

Исследована рентгеновская динамическая дифракция на двух щелях в прошедшем пучке. Выявлены особенности и различия в сравнении с динамической дифракцией на двух щелях в дифрагированном пучке. Найдены выражения для периода полученных интерференционных полос. Приведены распределения интенсивностей на основе численных расчетов и сравнены с теоретическими предсказаниями, полученные на основе приближенных выражений.

1. Введение

В работе [1] исследована рентгеновская динамическая дифракция на двух щелях в дифрагированном пучке. Было показано, что на выходной поверхности кристалла образовываются интерференционные полосы, аналогичные интерференционным полосам двухщелевой дифракции в оптике, известным как полосы Юнга. Получено выражение для периода этих полос. Таким образом, полосы двухщелевой рентгеновской динамической дифракции в кристалле можно получить на выходной поверхности кристалла, т. е. на глубине нескольких миллиметров. Заметим, что рентгеновские интерференционные полосы при дифракции на двух щелях в вакууме получаются на расстоянии несколько метров и более [2-7]. Такое огромное различие в расстояниях для получения интерференционных полос заключается в том, что малое угловое отклонение падающих на кристалл лучей порядка угловой секунды при динамической дифракции в кристалле приводит к отклонению соответствующих лучей внутри кристалла до порядка десятков градусов. Это уже на глубине в кристалле с толщиной порядка миллиметра и меньше обеспечивает наложение волн, исходящих из различных щелей. В противовес этому при дифракции в вакууме рентгеновские лучи отклоняются на углы порядка угловой секунды, и для их наложения пучки должны пройти расстояния в несколько метров и более.

В работах [8, 9] показано, что динамическую дифракцию на двух щелях можно осуществить, используя вместо двух щелей фокусированное рентгеновское излучение в двух фокусных точках с последующей дифракцией в кристалле. Это должно обеспечивать большую интенсивность интерферирующих волн.

В настоящей работе исследуется двухщелевая рентгеновская динамическая

дифракция в кристалле в проходящем пучке. Прошедший пучок имеет свои особенности при динамической дифракции и можно ожидать, что это приведет к некоторым другим особенностям распределения интенсивности динамической дифракции на двух щелях, отличающееся при такой же дифракции от распределения интенсивности в дифрагированном пучке.

2. Основные формулы

Схема рентгеновской динамической дифракции на двух щелях показана на рис.1. Рентгеновский пучок с волновым вектором \mathbf{K}_{0}^{i} , проходя через две щели падает на входную поверхность совершенного кристалла под углом θ^{i} по отношению к атомным отражающим плоскостям RP, перпендикулярным к входной поверхности кристалла. Ось *х* выбранной системы координат параллельна входной поверхности и антипараллельна вектору дифракции **h** для данного отражения. Ось *z* перпендикулярна к входной поверхности, а ось *y* перпендикулярна к плоскости дифракции *xz*. Обозначим угол Брэгта как θ , который близок к углу θ^{i} .

Введем обозначения: x, z – координаты точки наблюдения внутри кристалла, где $E^i(x')$ – амплитуда падающей на кристалл волны, x' есть x координата точки на входной поверхности кристалла, $k = 2\pi / \lambda$ – волновое число, $\Delta \theta = \theta^i - \theta$ – отклонение падающей волны от точного угла Брэгга. Коэффициенты $\chi_0, \chi_{h,\bar{h}}$ – Фурье-коэффициенты поляризуемости кристалла для σ -поляризации (поля перпендикулярны к плоскости дифракции), а для π -поляризации,



Рис.1. Схема рентгеновской динамической дифракции на двух щелях. На пути падающего пучка находится двухщелевая система. После прохождения щелей пучок подвергается дифракции в кристалле. Ширина щелей 2*a*, расстояние между центрами щелей 2*c*. RP – отражающие атомные плоскости, PB – проходящий пучок, DB – дифрагированный пучок. В области Q амплитуды волн равны нулю, поле на выходной поверхности кристалла занимает область A₀B₀, интерференционное поле двух щелей занимает область AB.

когда поля лежат в плоскости дифракции, коэффициенты $\chi_{h,\bar{h}}$ должны быть умножены на фактор поляризации $\cos 2\theta$. $\Lambda = \lambda \cos \theta / \sqrt{\chi_h \chi_{\bar{h}}}$ – длина экстинкции (в общем случае является комплексной величиной), H – функция Хевисайда, δ – дельта-функция Дирака, $J_0(x)$ и $J_1(x)$ – функции Бесселя нулевого и первого порядков.

Нахождение амплитуд проходящей и дифрагированной волн проведем с помощью функций Грина динамической задачи дифракции [10–12], выражая их как интегралы по входной поверхности кристалла:

$$E_{0} = \int_{-\infty}^{+\infty} G_{00}(x - x', z) E^{i}(x') \exp(ik \cos \theta \Delta \theta x') dx'$$

$$E_{h} = \int_{-\infty}^{+\infty} G_{h0}(x - x', z) E^{i}(x') \exp(ik \cos \theta \Delta \theta x') dx'.$$
(1)

Здесь функции Грина G₀₀ и G_{h0} даются выражениями:

$$G_{00}(x,z) = -\frac{k\sqrt{\chi_h\chi_h}}{4\sin\theta} \sqrt{\frac{z\tan\theta + x}{z\tan\theta - x}} J_1(\pi\cot\theta\sqrt{z^2\tan^2\theta - x^2} / \Lambda) \exp\left(\frac{ik\chi_0 z}{2\cos\theta}\right) H(z\tan\theta - |x|)$$

$$+2\sin\theta \exp\left(\frac{ik\chi_0 z}{2\cos\theta}\right) H(z\tan\theta + x)\delta(z\tan\theta - x),$$

$$G_{10}(x,z) = -\frac{ik\chi_h}{2\cos\theta} L(\pi\cot\theta\sqrt{z^2\tan^2\theta - x^2} / \Lambda) \exp\left(\frac{ik\chi_0 z}{2}\right) H(z\tan\theta - |x|)$$
(2)

$$G_{h0}(x,z) = \frac{\pi \pi}{4\sin\theta} J_0(\pi\cot\theta\sqrt{z^2}\tan^2\theta - x^2/\Lambda)\exp\left(\frac{\pi}{2\cos\theta}\right) H(z\tan\theta - |x|).$$

Нас будут интересовать поля в области перекрытия АВ полей, исходящих от двух щелей. Из (1)–(2) имеем

$$E_{0} = \int_{1}^{1} G_{00}(x - x', z)E^{i}(x')\exp(ik\cos\theta\Delta\theta x')dx' + \int_{2}^{1} G_{00}(x - x', z)E^{i}(x')\exp(ik\cos\theta\Delta\theta x')dx',$$

$$E_{h} = \int_{1}^{1} G_{h0}(x - x', z)E^{i}(x')\exp(ik\cos\theta\Delta\theta x')dx' + \int_{2}^{2} G_{h0}(x - x', z)E^{i}(x')\exp(ik\cos\theta\Delta\theta x')dx'.$$
(2)

Индексы 1 и 2 у интегралов обозначают интегрирование по первой и второй щели, соответственно.

3. Динамическая дифракция на двух щелях в прямом пучке

В области АВ второе слагаемое в выражении G₀₀, содержащем дельта-функцию, равно нулю. Следовательно, согласно (3), можно написать

$$E_{0} = -\frac{k\sqrt{\chi_{h}\chi_{h}}}{4\sin\theta} \exp\left(\frac{ik\chi_{0}z}{2\cos\theta}\right) \times$$

$$\int_{-c-a}^{-c+a} \sqrt{\frac{z\tan\theta + (x-x')}{z\tan\theta - (x-x')}} J_{1}(\pi\cot\theta\sqrt{z^{2}\tan^{2}\theta - (x-x')^{2}}/\Lambda)E^{i}(x')\exp(ik\cos\theta\Delta\theta x')dx' + \int_{c-a}^{c+a} ...dx',$$

$$E_{h} = \frac{ik\chi_{h}}{4\sin\theta} \exp\left(\frac{ik\chi_{0}z}{2\cos\theta}\right)_{-c-a}^{-c+a} J_{0}(\pi\cot\theta\sqrt{z^{2}\tan^{2}\theta - (x-x')^{2}}/\Lambda)E^{i}(x')\exp(ik\cos\theta\Delta\theta x')dx' + \int_{c-a}^{c+a} ...dx'.$$
(4)

Здесь многоточия во вторых интегралах обоих выражений означают, что подынтегральные выражения те же, что и подынтегральные выражения в первых

интегралах. Для амплитуды, падающей на двух щелевую систему волны, исходящей от точечного источника, имеем

$$E^{i}(x') = E_{0}^{(i)} \exp\left[ik\cos^{2}\theta(x'-x_{s})^{2}/(2L_{s})\right]/L_{s} \equiv A^{i} \exp\left[ik\cos^{2}\theta(x'-x_{s})^{2}/(2L_{s})\right].$$
 (5)

Здесь $L_{\rm s}$ – расстояние от источника до системы, $\xi_{\rm s}$ координата источника в плоскости дифракции в направлении перпендикулярном к направлению распространения падающей волны, причем для источника размером l в плоскости дифракции $\xi_{\rm s}$ меняется от -l/2 до l/2, для точечного источника в центре протяженного источника $\xi_{\rm s} = 0$. Введено также обозначение $x_{\rm s} = \xi_{\rm s} / \cos \theta$.

Таким образом, согласно (3) и (4), поле в области АВ можно представить в виде

$$E_0 = E_{01} + E_{02},$$

$$E_h = E_{h1} + E_{h2}.$$
(6)

3.1. Бесконечно узкие щели

Условие интерференции волн, идущих от двух щелей, заключается в том, что расстояние между щелями намного больше, чем ширина щелей, а щели настолько узкие, что их можно считать бесконечно узкими. В этом приближении подынтегральные функции можно вынести из-под знаков интегралов в точках $x' = \pm c$ и получить следующие выражения

$$E_{0} = 2a \Big[G_{00}(x+c,z)E^{i}(-c)\exp(-ik\cos\theta\Delta\theta c) + G_{00}(x-c,z)E^{i}(c)\exp(ik\cos\theta\Delta\theta c) \Big],$$

$$E_{h} = 2a \Big[G_{0h}(x+c,z)E^{i}(-c)\exp(-ik\cos\theta\Delta\theta c) + G_{0h}(x-c,z)E^{i}(c)\exp(ik\cos\theta\Delta\theta c) \Big].$$
(7)

Поля будем рассматривать в центральной части области АВ. В этой области $(x \pm c)^2 / (z^2 \tan^2 \theta) \ll 1$, кроме того, считается, что $\pi z / |\Lambda| \gg 1$. При этих предположениях аргументы функций Бесселя большие и можно воспользоваться асимпфункций тотическими выражениями для Бесселя $J_{v}(\xi) \approx \sqrt{2/(\pi\xi)} \cos(\xi - \pi v/2 - \pi/4).$ Далее, так как $\cos(\xi - \pi v / 2 - \pi / 4) = (e^{i(\xi - \pi v / 2 - \pi / 4)} + e^{-i(\xi - \pi v / 2 - \pi / 4)}) / 2$, то функции Бесселя в (2) можно представить в виде суммы двух мод. При достаточной толщине кристалла одна из них – $e^{-i(\xi - \pi v/2 - \pi/4)}$, сильно поглощается в кристалле и остается только ветвь $e^{i(\xi - \pi v/2 - \pi/4)}$. Используя условие $(x \pm c)^2 / (z^2 \tan^2 \theta) \ll 1$, приближенно можно написать $\sqrt{z^2 \tan^2 \theta - (x \pm c)^2} \approx z \tan \theta \left(1 - (x \pm c)^2 / (2z^2 \tan^2 \theta) \right)$. В результате в центральной части интересующей нас области АВ для G₀₀ и G_{h0} получим следующие приближенные выражения:

$$G_{00}(x \mp c, z) \approx \frac{ik\sqrt{\chi_h\chi_h}}{4\sin\theta} \exp\left(\frac{ik\chi_0 z}{2\cos\theta}\right) e^{-i\pi/4} \sqrt{\frac{z\tan\theta + (x \mp c)}{z\tan\theta - (x \mp c)}} \sqrt{\frac{2\Lambda}{\pi z}} e^{i\pi z \left[1 - (x \mp c)^2/(2z^2\tan^2\theta)\right]/\Lambda},$$

$$G_{h0}(x \mp c, z) = \frac{ik\chi_h}{4\sin\theta} \exp\left(\frac{ik\chi_0 z}{2\cos\theta}\right) e^{-i\pi/4} \sqrt{\frac{2\Lambda}{\pi z}} e^{i\pi z \left[1 - (x \mp c)^2/(2z^2\tan^2\theta)\right]/\Lambda}.$$
(8)

Здесь верхний знак соответствует второй щели. Из (7) и (8) для разности фаз

волн, идущих от двух щелей, имеем

$$\Phi = \frac{2\pi c}{\Lambda z \tan^2 \theta} x + 2kc \cos\theta \left(\Delta \theta - \frac{\xi_s}{L_s}\right).$$
(9)

Максимумы интерференционной картины получаются приравниванием разности фаз (9) к 2π*n* :

$$\Phi = 2\pi n, \ n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$$
 (10)

Из (9) и (10) следует, что интерференционные линии в центральной части области AB из себя представляют линии x = const с периодом

$$D = \frac{\Lambda z \tan^2 \theta}{c} \,. \tag{11}$$

Период одинаков как для дифрагированной, так и для проходящей волны. Но в случае проходящей волны амплитуды налагающихся волн от двух щелей различаются.

3.2. Щели с конечной шириной

На практике щели имеют конечные размеры и вынести функции из-под знаков интегралов невозможно. Интегралы можно получить численно.

3.3. Оценки временной и пространственной когерентности

Обычно используемое излучение источника не монохроматическое и различные точки источника некогерентны между собой. Поэтому необходимо оценить степень монохроматичности падающего излучения и те размеры источника в плоскости дифракции, при которых могут наблюдаться интерференционные полосы. В работе [1] сделан анализ этого вопроса. Там были получены следующие оценки степени монохроматичности (временная когерентность) и размеров источника (пространственная когерентность):

$$\begin{aligned} \left| \Delta \lambda / \lambda \right| &<< \pi / (2kc\sin\theta), \\ l &<< \pi L_s / (kc\cos\theta). \end{aligned}$$
(12)

4. Примеры

В примерах аналитически полученные выше результаты будут сравниваться с численными расчетами. Для иллюстрации полученных выше результатов, в качестве примера рассмотрим отражение Si(220) для излучения МоКа ($\lambda = 0.71 \text{ Å}, \theta = 10.63^{\circ}$) при σ -поляризации. Для кремния $\chi_{0r} = -3.162 \times 10^{-6}$, $\chi_{0i} = 0.165 \times 10^{-7}$, $\chi_{hr} = \chi_{\bar{h}r} = -1.901 \times 10^{-6}$, $\chi_{hi} = \chi_{\bar{h}i} = 0.159 \times 10^{-7}$ [12]. Соответственно, имеем $\Lambda_r = \text{Re }\Lambda = 36.6$ и $\Lambda_r \tan \theta = 6.9$ мкм. Будем предполагать, что щели имеют размер 2a = 10 мкм, а расстояние между их центрами – 2c = 80 мкм. Толщина кристалла z = 3 мм, при этом $\mu z = 4.4$, где $\mu = k \text{ Im}[\chi_0]$ – линейный коэффициент поглощения кристалла. Из (12) получаются следующие оценки для когерентности: $|\Delta\lambda/\lambda| < 2.4 \cdot 10^{-6}$, l < 90 мкм, причем для расстояния

источник-кристалл взято значение $L_s = 100$ м, которое будет таким же и в последующих примерах, в которых еще и берется $\xi_s = 0$. В качестве меры интенсивности берем интенсивность падающей волны, т. е. в приведенных примерах под $I_{0,h}$ мы понимаем $I_{0,h} \equiv |E_{0,h}|^2 / |A^{(i)}|^2$, а для индивидуальных щелей – $I_{0,h} \equiv |E_{01,02;h1,h2}|^2 / |A^{(i)}|^2$.

Ниже приводятся распределения интенсивностей, выполненные численным интегрированием, которые сравниваются со сделанными предсказаниями на основе приближенного, аналитического подхода.

На рис.2а показаны распределения интенсивностей от индивидуальных щелей в дифрагированной волне, а на рис.2b – распределение интенсивности дифрагированной волны на выходной поверхности кристалла. Как видно из этих рисунков, имеется область перекрытия волн, идущих от двух индивидуальных щелей, вследствие чего возникает интерференционная картина, аналогичная известным из оптики полосам Юнга. Кроме того, на распределениях интенсивности от отдельных щелей почти нет осцилляций, что свидетельствует о том, что хорошо выполняется условие Бормана, и мы фактически имеем дело с распределением интенсивности слабо поглощающейся моды. Период полос, полученный численным интегрированием, составляет приблизительно 95 мкм, тогда как аналитическая формула (11) дает значение 96.6 мкм. На рис.2 $\Delta \theta = 0$, так что согласно (9) и (10), центральный максимум расположен в x = 0. Эти результаты, относительно распределения интенсивности в дифрагированном пучке, ранее были получены в работе [1].

Теперь остановимся на распределении интенсивности в проходящем пучке. На рис.За показаны распределения интенсивности в проходящих пучках от двух индивидуальных щелей по отдельности. Мы берем $\Delta \theta = 0$. Как видно из этого рисунка, максимумы интенсивности от отдельных щелей не находятся под соответствующей щелью, как это было в дифрагированном пучке, а смещены в направлении прошедшего пучка. Кроме того, максимумы интенсивности почти в два раза выше, чем в дифрагированном пучке. Это важно, так как для наблюдения полос необходимо иметь достаточное значение интенсивности. На рис.Зь показано впервые полученное распределение интенсивности в прошедшем пучке.



Рис.2. Распределение интенсивности (а) от индивидуальных щелей и (b) от двух щелей в дифрагированном пучке. Индексы *l* и 2 на распределениях интенсивности отдельных щелей обозначают первую и вторую щель.



Рис.3. Распределение интенсивности (а) от индивидуальных щелей и (b) от двух щелей в прошедшем пучке. Индексы *l* и *2* на распределениях интенсивностей отдельных щелей обозначают первую и вторую щель.

Здесь, как и было предсказано аналитически, получены равноотстоящие интерференционные полосы, аналогичные полосам Юнга. Период полос на рисунке приблизительно 94 мкм, тогда как по аналитически полученной формуле (11) должно быть 96.6 мкм. Центральный пик находится в x = 0, как и должно быть. Но в прошедшем пучке, по сравнению с распределением интенсивности в дифрагированном пучке, имеются отличия. Для всех максимумов интенсивность в прошедшем пучке в несколько раз выше со стороны прошедшего пучка, а со стороны дифрагированного пучка выше значения максимумов для дифрагированного пучка. Далее, половина интерференционных максимумов на стороне с положительными значениями координат (в направлении прошедшего пучка) значительно выше по значению, чем для максимумов с отрицательными координатами. Это означает, что интенсивность в проходящем пучке будет наблюдаться с меньшей экспозицией, чем в дифрагированном пучке, и будет наблюдаться с лучшим контрастом для положительных значений координаты х. На рис.4 для сравнения распределения интенсивностей в дифрагированном и проходящем пучках показаны вместе (т. е. показаны вместе рис.2b и рис.3b). Из этого рисунка явно видно насколько интенсивны полосы в проходящем пучке.

Одним из последствий аналитически полученной формулы (9) является то, что для $\Delta \theta - \xi_s / L_s = 0$ центральный максимум располагается в x = 0. Мы берем $\xi_s = 0$, и если брать $\Delta \theta \neq 0$, то согласно (9), интерференционные полосы будут смещены на

$$\Delta x = -\frac{Dkc\cos\theta}{\pi}\Delta\theta.$$
(13)

Смещение отрицательно при положительном $\Delta \theta$ и положительно при отрицательном $\Delta \theta$. Возьмем $\Delta \theta = \pm 10^{-7}$ (это составляет приблизительно ± 0.02 угловых секунд). Согласно (13), смещение интерференционных полос будет ∓ 10.7 мкм. Для $\Delta \theta = 10^{-7}$ распределения интенсивностей в дифрагированном и проходящем пучках приведены на рис.5а, а для значения $\Delta \theta = -10^{-7}$ – на рис.5b. Кривые *I* и *2* соответствуют дифрагированной и прошедшей волнам. Полученные значения смещений на численно рассчитанных кривых соответствуют аналитически рассчитанным значениям и приблизительно равны 10.7 мкм.



Рис.4. Распределения интенсивностей в дифрагированном (кривая *1*) и в прошедшем пучках (кривая *2*). В проходящем пучке значения максимумов значительно выше, чем в дифрагированном пучке.



Рис.5. Распределения интенсивностей в дифрагированном (кривая 1) и в проходящем пучках (кривая 2) для (а) $\Delta \theta = 10^{-7}$ и (b) $\Delta \theta = -10^{-7}$. Полосы смещены относительно центра на отрицательном и положительном направлениях, соответственно, как это и следует из аналитического рассмотрения. Значения смещений соответствуют полученным по аналитическим оценкам значениям.

5. Заключение

В работе исследована симметричная лауэвская динамическая дифракция рентгеновских лучей в совершенном кристалле, когда вместо одной щели используется двухщелевая система для падающей на кристалл волны. Две щели поставлены перед кристаллом. Внимание сосредоточено на рассмотрении интерференционных полос в проходящем пучке и его сравнении с распределением интенсивности в дифрагированном пучке.

В работе показано, что полосы, аналогичные интерференционным полосам в дифрагированном пучке, получаются и в проходящем пучке. Период полос тот же, что и в дифрагированном пучке, но значения максимумов в прошедшем пучке в несколько раз выше, чем в дифрагированном пучке. Кроме того, значения максимумов со стороны проходящего пучка выше (антипараллельное направление относительно вектора дифракции), чем со стороны дифрагированного пучка (параллельное к вектору дифракции направление). Эти выводы показывают, что экспериментальное наблюдение полос значительно выгоднее делать в проходящем пучке.

Как в проходящем, так и в дифрагированном пучках имеется центральный максимум в центре пучка, если пучок падает на кристалл под точным углом Брэгга. При отклонении падающего пучка от точного угла Брэгга интерференционные полосы смещаются в направлении вектора дифракции, при положительном значении отклонения от угла Брэгга, и в антипараллельном к вектору дифракции направлении, если отклонение от угла Брэгга отрицательное. Отклонения на сотые доли угловой секунды могут привести к смещениям полос порядка десяти микрон.

Даны оценки временной и пространственной степени когерентности падающего излучения, при выполнении которых будут наблюдаться полосы с хорошим контрастом. Эти требования когерентности одни и те же для прошедшего и дифрагированного пучков.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. M.K. Balyan. Acta Cryst A, 66, 660 (2010).
- 2. W. Leitenberger, S.M. Kusnetsov, A. Snigirev. Optics Communications, 191, 91 (2001).
- W. Leitenberger, H. Wendrock, L. Bischoff, T. Weitkamp. J. Synchrotron Rad., 11, 190 (2004).
- 4. W. Leitenberger, U. Pietch. J. Synchrotron Rad., 14, 196 (2007).
- A.F. Isakovic, A. Stein, J.B. Warren, A.R. Sandy, S. Narayanan, M. Sprung, J.M. Ablett, D.P. Siddons, M. Metzler, K. Evans-Lutterodt. J. Synchrotron Rad., 17, 451 (2010).
- A. Snigirev, I. Snigireva, V. Kohn, V. Yunkin, S. Kuznetsov, M.B. Grigoriev, T. Roth, G. Vaughan, C. Detlefs. Phys. Rev. Lett., 103, 064801 (2009).
- 7. A. Snigirev, I. Snigireva, M. Lyubomirskiy, V. Kohn, V. Yunkin, S. Kuznetsov. Opt. Express, 22, 25842 (2014).
- 8. V.G. Kohn, V.A. Smirnova. Crystallogr. Rep., 66, 897 (2021).
- 9. V.G. Kohn, V.A. Smirnova. Crystallogr. Rep., 67, 1068 (2022).
- 10. S. Takagi. J. Phys. Soc. Jpn., 26, 1239 (1969).
- 11. A. Authier. Dynamical theory of X-ray diffraction, Oxford, University Press, 2001.
- 12. З.Г. Пинскер. Рентгеновская кристаллооптика. Москва, Наука, 1982.

DOUBLE–SLIT X-RAY DYNAMICAL DIFFRACTION IN THE TRANSMITTED BEAM

A.P. AIVAZYAN, M.K. BALYAN, S.A. PETROSYAN, V.P. MKRTCHYAN

The double-slit dynamical X-ray diffraction in the transmitted beam is investigated. The features and differences in comparison with the double-slit dynamical diffraction in the diffracted beam are revealed. The expressions for the period of the obtained interference fringes are found. The intensity distributions based on numerical calculations are presented and compared with theoretical predictions obtained based on approximate expressions. Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.139–148 (2025) УДК 541.64 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-139

СРАВНИТЕЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ФЛУОРЕСЦЕНТНЫХ СВОЙСТВ КОМПЛЕКСОВ МЕТИЛЕНОВОГО СИНЕГО С РИБО- И ДЕЗОКСИРИБО-ПОЛИНУКЛЕОТИДАМИ

А.П. АНТОНЯН, М.А. ПАРСАДАНЯН^{*}, А.Г. КАРАПЕТЯН, П.О. ВАРДЕВАНЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: marine.parsadanyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 1 февраля 2025 г.)

Проведено исследование флуоресцентных свойств комплексов метиленового синего (MC) с оц-poly(dA), poly(rU), poly(rA) и poly(dT), а также гибридными дц-структурами poly(rA)-poly(dT) и poly(dA)-poly(rU). На основании изменений спектров флуоресценции и абсорбции выявлено, что этот лиганд проявляет неодинаковое сродство к определенным гомополинуклеотидным последовательностям. В частности, обнаружено, что MC с ярко выраженной специфичностью связывается с poly(rA) по сравнению с оц-poly(dA), poly(rU) и poly(dT). Различие проявляется и при взаимодействии MC с гибридными дц-полинуклеотидами poly(rA)-poly(dT) и poly(dA)-poly(rU).

1. Введение

Исследование взаимодействия многих красителей с нуклеиновыми кислотами (НК) представляет большой интерес для понимания молекулярных аспектов взаимодействия. При этом для таких исследований в растворе информативными являются различные физические методы, которые позволяют изучить межмолекулярные взаимодействия в растворе. К физическим относятся спектральные методы, в числе которых флуоресцентная, абсорбционная спектроскопии. Среди красителей, имеющих прикладное значение и широкое применение в биофизических исследованиях – фенотиазиновое соединение метиленовый синий (МС) (хлорид 3.7-бис(диметиламино)-фенотиазин-5 хлорид), который имеет к тому же фармацевтическое значение. Этот лиганд интенсивно ингибирует нативную антидепрессантную моноаминоксидазу (МАО), что обусловливает его применение при хроническом нейродегенеративном заболевании Альцгеймера. МС обладает сосудосуживающим эффектом, препятствует расслаблению гладких мышц и вазодилатации, препятствуя циклическому гуанозинмонофосфатному пути, контролируемому оксидом азота. При различных психических расстройствах МС может предотвращать накопление в мозге высоких доз потенциально смертельного серотонина посредством ингибирования моноаминоксидазы (ИМАО) [1-4]. Взаимодействие метиленового синего с ДНК приводит к окислительному повреждению ДНК, вызывая в основном модификации гуаниновых оснований, приводящие к 7. 8-дигидро-8-оксогуанину (8-охоG) и другим незначительным

модификациям нуклеотидов. Введение МС для различных целей было одобрено Федеральным управлением по контролю за продуктами питания и лекарственными средствами (FDA). В настоящее время многие аспекты связывания МС с двухцепочечной ДНК подробно изучены, однако исследования по взаимодействию этого лиганда с одноцепочечной ДНК и РНК малочисленны. Также оставались в стороне исследования влияния этого лиганда на гибридизацию одноцепечечных олиго- или полимерных нитей ДНК, РНК или ДНК/РНК [5].

В связи с этим, для понимания молекулярных основ различных аспектов функционирования НК, исследования взаимодействия низкомолекулярных веществ с одноцепочечными (оц-) полинуклеотидами и сформированными в результате их гибридизации двухцепочечных (дц-) структур могут стать информативными. Целью данной работы явилось исследование взаимодействия МС с одноцепочечными poly(rA), poly(rU), poly(dA), poly(dT) и гибридными двухцепочечными роly(rA)-poly(dT) и poly(dA)-poly(rU).

2. Материалы и методы

В работе были использованы сверхчистые синтетические полинуклеотиды poly(rA), poly(rU), poly(dA), poly(dT), MC (Sigma, CШA), бидистиллированная вода, NaCl, Na-цитрат, Na₂EDTA (содержание в рабочих растворах 10^{-5} M). Концентрации препаратов определялись спектрофотометрически, используя следующие коэффициенты экстинкции: $\varepsilon_{665} = 76000$ для MC [5], $\varepsilon_{257} = 10500$ для poly(rA), $\varepsilon_{260} = 9500$ для poly(rU), $\varepsilon_{257} = 8600$ для poly(dA) и $\varepsilon_{257} = 8520$ M⁻¹см⁻¹ для poly(dT) [6]. Исследования проводились при ионной силе раствора 0.02 моль, $pH \approx 7.0$. Средняя молекулярная масса оц-полинуклеотидов составляет примерно 800-1000 кДа.

Флуоресцентные исследования проводились на спектрофлуориметре Agilent Cary Eclipse Fluorescence Spectrometer (США), абсорбционные исследования – на спектрофотометре UV/VIS Perkin Elmer Lambda 365 (США), при комнатной температуре (~22°С).

При спектроскопических титрованиях концентрация МС оставалась постоянной, концентрации макромолекул увеличивались в интервале $0 \le r \le 10$ (r = P/D, где P – концентрация фосфатных групп полинуклеотидов, D – концентрация лиганда). Изменения спектров флуоресценции регистрировались в интервале изменения длины волны 600 $\leq \lambda \leq$ 750 нм, с максимумом интенсивностей при $\lambda_{\text{макс}} = 690$ нм, при длине волны возбуждения в спектральной области поглощения MC λ_{exit} = 610 нм. Изменения интенсивностей флуоресценции комплексов регистрировались при каждом соотношении вплоть до значений Р/D, при которых эти изменения становились незначительными. Спектры поглощения комплексов МС с указанными оц- и дц-полинуклеотидами регистрировались в видимой области электромагнитных волн, в интервале поглощения лиганда – $600 \le \lambda \le 750$ нм. На основании изменений интенсивности спектров флуоресценции и поглощения получены их относительные изменения (F_0/F) и A_0/A , соответственно), и построены кривые зависимости этих соотношений концентраций полинуклеотидов. от Экспериментальная погрешность не превышала 5%.
3. Результаты и обсуждения

Среди различных аналитических методов достаточно информативными являются абсорбционная и флуоресцентная спектроскопии, сочетание которых позволяет выявить некоторые физико-химические свойства различных соединений на основании их оптических или флуоресцентных свойств. Так спектры поглощения или флуоресценции многих лигандов претерпевают заметные изменения при их комплексообразовании с белками или нуклеиновыми кислотами. Более того, изменения в спектрах поглощения биологически активных веществ при связывании с биомакромолекулами зачастую могут отражать особенности молекулярных механизмов этих взаимодействий.

С этой точки зрения для выявления взаимодействия МС с одноцепочечными poly(rA), poly(rU), poly(dA), poly(dT) полинуклеотидами и влияния этого лиганда на гибридизацию poly(rA) с poly(dT) и poly(dA) с poly(rU) нами получены спектры флуоресценции и поглощения. При взаимодействии MC с оц-poly(dA), poly(rA), poly(dT) и poly(rU) наблюдалось уменьшение интенсивности флуоресценции при длине волны 690 нм по мере увеличения концентрации полинуклеотидов в растворе в интервале $0 < r \le 10$, где $r = C_p/C_l (C_p - концентрация данного$ полинуклеотида, C_l – общая концентрация лиганда в растворе). На рис.1 приведены спектры флуоресценции комплексов MC-poly(dA), MC-poly(dT), MCpoly(rA) и MC-poly(rU). Как видно из приведенного рисунка, интенсивность флуоресценции этого лиганда по мере образования комплексов уменьшалась, причем при относительно больших концентрациях полинуклеотида изменение становилось не детектируемым. Этот эффект имел место при всех указанных гомополинуклеотидах, однако из полученных спектров выявилось, что МС проявляет некоторую специфичность к poly(rA), поскольку интенсивность флуоресценции в этом случае уменьшалась в большей степени по сравнению с



Рис.1. Спектры флуоресценции комплексов (a) MC-poly(dA), (b) MC-poly(dT), (c) MC-poly(rA) и (d) MC-poly(rU).

остальными полинуклеотидами. Этот эффект при низких концентрациях полинуклеотида является результатом того, что переход молекул MC из свободного состояния в связанное является предпочтительным. Учитывая, что poly(rA) в растворе находится в более упорядоченном состоянии (степень стекинг взаимодействий выше по сравнению с остальными оц-полинуклеотидами), мы полагаем, что молекулы лиганда в результате полуинтеркаляционного способа связывания переходят в более полярное окружение, что и вызывает существенное тушение флуоресценции (см. [7]).

Примечательно, что наименьшее уменьшение выявлено для комплексов MC с оц-poly(rU). По всей вероятности, это обусловлено структурными особенностями указанных оц-полинуклеотидов и наблюдаемый эффект может быть индикатором того, что оц-poly(rU) в растворе находится в более неупорядоченном состоянии.

Изменение интенсивности флуоресценции имеет место и при добавлении на раствор комплексов MC-оц-полинуклеотид раствора полинуклеотида, комплементарного последнему (раствор poly(rU) на раствор poly(dA) и раствор poly(dT) на раствор poly(rA), соответственно). Ранее было показано, что комплементарные оц-полирибонуклеотиды гибридизируются, образуя двухцепочечные структуры (см. [7]). На рис. 2 а, b приведены спектры флуоресценции комплексов MC с poly(dA)-poly(rU) и poly(rA)-poly(dT), образовавшихся в результате гибридизации соответствующих оц-полинуклеотидов. В частности, в случае образования комплексов MC с гибридным дц-полинуклеотидом poly(rA)-poly(dT) (рис.2а) при



Рис.2. Спектры флуоресценции комплексов (a) MC с poly(rA)-poly(dT) и (c) с poly(dA)-poly(rU). (b), (d) Кривые зависимости тушения флуоресценции MC от концентрации полинуклеотида: кривые *1* получены для комплексов MC-оц-полинуклеотид, кривые *2* – для комплексов MC-дц-полинуклеотид.

превалировании оц-структур наблюдалось дальнейшее уменьшение интенсивности флуоресценции комплексов (кривые 1-13). Однако по мере возрастания концентрации дц-структур этого гибрида интенсивность флуоресценции возрастала (кривые 14-21).

Из приведенного рисунка также видно, что наряду с увеличением интенсивности флуоресценции комплексов MC с poly(rA)-poly(dT) имеет место также ярко выраженный батохромный сдвиг, что указывает на интеркаляционный способ связывания лиганда с образовавшимся дц-полинуклеотидом. Иной эффект получен при взаимодействии MC с гибридным дц-poly(dA)-poly(rU), как это видно из рис.2с, поскольку интенсивность флуоресценции уменьшалась во всем интервале образования дц-структур. Аналогичный эффект получен при взаимодействии MC с дц-PHK и ДНК (см. [1, 8]). Мы полагаем, что увеличение интенсивности флуоресценции MC в случае образования гибридной структуры poly(rA)-poly(dT) обусловлено тем, что места для интеркаляции молекул этого лиганда становятся ограниченными, в результате чего некоторая часть связанных с оц-полинуклеотидами молекул диссоциирует и переходит в свободное состояние. Аналогичный эффект был получен и при образовании гибридной дц-структуры между poly(rA) и poly(rU) в присутствии MC [7].

На основании максимумов интенсивностей флуоресценции получены кривые зависимости F_0/F от концентрации полинуклеотида (C_p), которые приведены на рис.2b, d. Как видно из приведенного рисунка, при взаимодействии с оцpoly(dT) и poly(rU) (также с poly(rA) и poly(dA)) кривые зависимости F_0/F от C_p возрастали, что является результатом тушения флуоресценции при комплексообразовании МС с полинуклеотидами. Эти кривые прямолинейные (рис.2b, d, кривые I), что указывает на статическое или динамическое тушение. Статическое тушение обычно обусловлено тем, что флуорофор и тушитель образуют комплексы, находясь в основном синглетном состоянии, в то время как при динамическом тушении флуорофор образует комплексы с тушителем, находясь в возбужденном состоянии, и переходит в основное состояние за счет неизлучательной дезактивации [8]. Несмотря на механизмы тушения в обоих случаях увеличение F_0/F указывает на то, что молекулы MC находятся в доступном для растворителя состоянии. С этой точки зрения в случае гибридного дц-poly(rA)poly(dT) наблюдается увеличение F_0/F при низких концентрациях этого полинуклеотида, а при больших концентрациях F_0/F существенно уменьшалось (рис.2b, кривая 2). Аналогичное уменьшение ранее было получено в работе [7] и в случае гибридизации poly(rA) и poly(rU). Мы полагаем, что этот факт обусловлен тем, что в результате образования двухцепочечной структуры некоторая часть связанных с оц-полинуклеотидами молекул МС диссоцирует, из-за ограниченности центров связывания интеркаляционным способом, на дц-poly(rA)-poly(dT).

Качественно иная картина получена в случае образования двухцепочечной структуры poly(dA)-poly(rU) из соответствующих оц-полинуклеотидов. Как видно из рис. 2с, кривая зависимости F_0/F от C_p (кривая 2) возрастала, при этом в случае гибридного дц-полинуклеотида возрастание этой кривой больше, чем в случае оц-полинуклеотидов (гибридный дц-poly(dA)-poly(rU) получен как при титрации раствора комплексов MC-оц-poly(dA) раствором оц-poly(rU), так и при обратном титровании). Этот факт указывает на то, что на гибридном дц-poly(dA)-poly(rU) число центров для интеркаляционного связывания MC не ограничено,

как в случае дц-poly(rA)-poly(dT). Этот факт указывает на то, что гибридные poly(rA)-poly(dT) и poly(dA)-poly(rU) в растворе структурно отличаются друг от друга.

На рис.3 представлены спектры поглощения МС и его комплексов с оцpoly(rA) (рис.3а) и гибридным poly(rA)-poly(dT) (рис.3b), а также кривые зависимости A_0/A от C_p (рис.3с) комплексов MC-poly(rA) (1) и MC-poly(rA)-poly(dT) (2). Как видно из приведенного рисунка, спектры поглощения МС уменьшались в максимумах при связываниии как с оц-, так и с дц-полинуклеотидами (аналогичные спектры и кривые зависимости A₀/A от C_p получены для комплексов MC с оц-poly(dT), которые схожи с таковыми комплексов MC-poly(rA), поэтому не приводятся). Однако на спектрах комплексов МС с дц-полинуклеотидами образовалась изобестическая точка (ИТ) при $\lambda = 680$ нм, в то время как такая точка на спектрах комплексов МС-оц- полинуклеотид не образуется. Образование ИТ является показателем связывания лиганда с НК интеркаляционным механизмом. Этот факт указывает на то, что при смешивании оц-полинуклеотидов в эквимолярных концентрациях имеет место гибридизация, в результате чего формируется дц-структура со свободными центрами связывания для интеркаляции молекул МС, которые заполняются при комплексообразовании лиганда с НК. Вследствие этого максимумы спектров поглощения комплексов уменьшаются в большей степени. На основании значений максимумов спектров МС и его комплексов с оц- и дц-полинуклеотидами получено соотношение А₀/А и построена кривая зависимости от C_p , которая приведена на рис.3с. В случае оц-полинуклеотидов кривая зависимости претерпевает небольшое изменение, возрастая линейно (кривая I). Однако в результате гибридизации и формирования poly(rA)-



Рис.3. Спектры поглощения комплексов (a) MC с poly(rA) и (b) с poly(rA)poly(dT). Кривые зависимости (c) A_0/A от C_p комплексов MC-poly(rA) (l) и MC- poly(rA)-poly(dT) (2).

роly(dT) эта кривая существенно возрастает при относительно низких концентрациях дц-структур и достигает насыщения при $r = C_p/C_l \rightarrow 10$. Это подтверждает тот факт, что число центров связывания для интеркаляции молекул MC на гибридном poly(rA)-poly(dT) ограничено. На это указывают и результаты, полученные при взаимодействии MC с гибридным poly(dA)-poly(rU), как это видно из рис.4. Как и в случае оц-oly(rA), при связывании этого лиганда с оц-poly(dA) спектры поглощения уменьшились в максимумах (рис.4а), однако более значительное уменьшение получено для комплексов MC-poly(dA)-poly(rU) (рис.4b). На спектрах этих комплексов также образовалась ИТ при $\lambda = 680$ нм. При этом кривая зависимости A_0/A от C_p в случае комплексообразования MC с гибридным дц-полинуклеотидом poly(dA)-poly(rU) также возрастает, однако не достигает насыщения. Мы полагаем, что этот эффект обусловлен тем, что число центров связывания интеркаляционным способом для молекул лиганда не ограничено вплоть до соотношения полинуклеотид/ лиганд $r \rightarrow 10$.



Рис.3. Спектры поглощения (a) комплексов MC c poly(dA) и (b) c poly(dA)poly(rU). Кривые зависимости (c) A_0/A от C_p комплексов MC- poly(dA) (1) и MC- poly(dA)-poly(rU) (2).

4. Заключение

Гибридизация определенных последовательностей РНК с комплементарными последовательностями ДНК происходит на многих ключевых этапах различных важных биологических процессов: при образовании фрагментов Оказаки, во время репликации ДНК в транскрипционном пузыре, в процессе обратной транскрипции в жизненном цикле различных РНК вирусов [9–14]. Гибриды РНК/ДНК также важны для их терапевтического применения в различных методах, в том числе ASO (для синтеза антисмысловых олигонуклеотидов) или создания CRISPR (кластеризованные регулярно интерспейсированные короткие палиндромные повторы–Cas9) [13, 14]. ДНК/РНК гибридные структуры обычно образуют правозакрученные дуплексы, которые не всегда принимают стандартную структуру А-конформации из-за внутренней асимметрии между цепями ДНК и РНК [9–10]. Интересно, что ключевой источник асимметрии – несбалансированное соотношение пуринов/пиримидинов (Pur/Pyr) между цепями ДНК и РНК, что влияет на стабильность общей гибридной структуры. Выявлено, что гибридная структура ДНК/РНК более стабильна (что приводит к более жесткому и А-подобному дуплексу) в случае взаимодействия богатой пиримидиновыми основаниями (Руг) ДНК с богатыми пуриновыми основаниями (Pur) PHK.

Гибриды с Руг-богатой РНК менее стабильны, более гибки и менее А-подобны. Это обусловлено тем, что в oligo(T) или poly(T) последовательностях степень стекинга больше, чем их урациловых аналогах. Такие структурные и динамические особенности различных типов гибридов ДНК/РНК могут влиять на вышеуказанные биологические свойства образовавшихся гибридных молекул [11–14].

Таким образом, основываясь на вышеуказанное, из полученных нами данных, мы полагаем, что MC связывается как с оц-, так и с дц-полирибо- и полидезоксирибонуклеотидами. Однако этот лиганд проявляет неодинаковое сродство к определенным гомополинуклеотидным последовательностям. В частности, в случае связывания MC с poly(rA) наблюдается существенное уменьшение интенсивности флуоресценции [7]. Различие получено и при взаимодействии MC с гибридными дц-полинуклеотидами poly(rA)-poly(dT) и poly(dA)-poly(rU). Полученные нами данные выявляют, что число мест связывания MC интеркаляционным способом на poly(rA)-poly(dT) более ограничено, чем на poly(dA)poly(rU), в результате чего некоторая доля связанных молекул лиганда диссоцирует, вследствие чего и имеет место увеличение интенсивности флуоресценции при комплексообразовании этого лиганда с poly(rA)-poly(dT).

Известно, что дуплексы poly(rA)-poly(dT) и poly(dA)-poly(rU) являются ДНК/РНК гибридами, и образуются при репликации и восстановлении повреждений ДНК. При этом они в растворе главным образом принимают А- конформацию, однако имеют структурные различия в растворе [1]. В частности, poly(rU)poly(dT) принимает термодинамически менее стабильную дц-структуру несмотря на то, что poly(rA) и poly(dT) образуют Уотсон-Криковские дуплексы. При образовании гибридной дц-структуры poly(dT), оставаясь в В-конформации, частично приспособливается к А-форме, однако присущие дц-РНК дополнительные водородные связи и стекинг взаимодействия в этом гибридном дуплексе отсутствуют. С этой точки зрения, при формировании дц-структуры poly(dA)poly(rU), вышеуказанные взаимодействия возникают, поскольку при гибридизации poly(dA) принимают А-форму. Это приводит к образованию более стабильного дуплекса [9, 10].

Необходимо отметить, что, в результате связывания с НК, метильные группы МС препятствуют образованию водородных связей между молекулами лиганда и воды, вследствие чего имеет место слабый длинноволновый сдвиг спектров поглощения. Этот батохромный эффект сопрягается со стекинг-взаимодействиями между плоским гетероциклом лиганда и азотистыми основаниями полинуклеотидов. При этом при комплексообразовании МС с НК эти взаимодействия приводят к уменьшению энергии возбуждения $\pi \rightarrow \pi^*$ переходов электронов, в результате чего имеет место гипохромный эффект. С другой стороны, при связывании МС с НК изменяется внутримолекулярное сродство между аминогруппами оснований и отрицательно заряженным остовом дц-полинуклеотида, в результате чего молекулы лиганда не полностью экранируются от воды. Этими эффектами обусловливается и уменьшение интенсивности флуоресценции [15– 17]. С этой точки зрения, указанные эффекты при образовании poly(rA)-poly(dT) и poly(dA)-poly(rU) проявляются в различной степени, что и обусловливает неодинаковость оптических свойств МС, при связывании с этими дц-гибридами.

Суммируя вышесказанное, мы заключаем, что интеркалирующее соединение MC проявляет выраженную специфичность к оц-poly(rA), по сравнению с poly(rU), poly(dA) и poly(dT). В то же время этот лиганд стимулирует гибридизацию между оц-poly(rA) и poly(dT), стабилизируя образовавшуюся дц-структуру.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. P. Paul, S.S. Matib, G.S. Kumar. J Photochem & Photobiol B, 204, 111804 (2020).
- M. Alda, M. McKinnon, R. Blagdon, J. Garnham, S. MacLellan, C. O'Donovan, T. Hajek, C. Nair, S. Dursun, G. MacQueen. Br. J. Psychiatry, 210, 54 (2017).
- T.C. Dumbarton, S.K. Gorman, S. Minor, O. Loubani, F. White, R. Green. Ann. Pharmacother., 46, e6 (2012).
- L. Vutskits, A. Briner, P. Klauser, E. Gascon, A.G. Dayer, J.Z. Kiss, D. Muller, M.J. Licker, D.R. Morel. Anesthesiology, 108, 684 (2008).
- 5. M. Hossain, A. Kabir, G.S. Kumar. Dyes and Pigments, 92, 1376 (2012).
- N.W. Luedtke, J.S. Hwang, E. Nava, D. Gut, M. Kol, Y. Tor. Nucleic Acids Research, 31, 5732 (2003).
- 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).
- P.O. Vardevanyan, A.P. Antonyan, M.A. Parsadanyan, M.A. Shahinyan, V.G. Sahakyan. J. of Biomol. Struct. Dyn., 36, 3607 (2017).
- 9. D. Banerjee, H. Tateishi-Karimata, T. Ohyama, S. Ghosh, T. Endoh, Sh. Takahashi, N. Sugimoto dition. Nucleic Acids Res., 48, 12042 (2020).
- 10. G. Palermo. Chem, 5, 1357 (2019).
- 11. T. Ogawa, T. Okazaki. Annu. Rev. Biochem., 49, 421 (2003).
- 12. C.F. Bennett, E.E. Swayze. Annu. Rev. Pharmacol. Toxicol., 50, 259 (2010).
- M. Terrazas, V. Genna, G. Portella, N. Villegas, D.A. Sa'nchez, C., C. Pulido-Quetglas, R. Johnson, R. Guigo, I. Brun-Heath, A. Aviñó, R. Eritja, M. Orozco. Chem, 5, 1619 (2019).
- C.G. Ricci, J.S.Chen, Y. Miao, M. Jinek, J.A.Doudna, J.A. McCammon, G. Palermo. ACS Cent. Sci., 5, 651 (2019).
- 15. M.M. Islam, S.R. Chowdhury, G.S. Kumar. J. Phys. Chem. B, 113, 1210 (2009).
- 16. N. Shahabadi, S. Hadidi. Spectrochim. Acta Mol. Biomol. Spectrosc., 96, 278 (2012).
- 17. N. Shahabadi, M. Maghsudi. Mol. BioSyst., 10, 338 (2014).

ՌԻԲՈ- ԵՎ ԴԵԶՕՔՍԻՌԻԲՈ-ՊՈԼԻՆՈԻԿԼԵՈՏԻԴՆԵՐԻ ՀԵՏ ՄԵԹԻԼԵՆԱՅԻՆ ԿԱՊՈՒՅՏԻ ՀԱՄԱԼԻՐՆԵՐԻ ՖԼՈՒՈՐԵՍՑԵՆՏԱՅԻՆ ՀԱՏԿՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ՈՒՍՈՒՄՆԱՍԻՐՈՒԹՅՈՒՆԸ

Ա.Պ. ԱՆՏՈՆՅԱՆ, Մ.Ա. ՓԱՐՍԱԴԱՆՅԱՆ, Ա.Հ. ԿԱՐԱՊԵՏՅԱՆ, Պ.Հ. ՎԱՐԴԵՎԱՆՅԱՆ

Ուսումնասիրվել են միաշղթա poly(dA), poly(rU), poly(rA) և poly(dT), ինչպես նաև հիբրիդային երկշղթա poly(rA)-poly(dT) և poly(dA)-poly(rU) պոլինուկլեոտիդների հետ ՄԿ-ի համալիրների ֆլուորեսցենտային հատկությունները։ Ֆլուորեսցենտային և կլանման սպեկտրների փոփոխությունների հիման վրա բացահայտվել է, որ այդ լիգանդը ոչ միանման խնամակցություն է ցուցաբերում որոշակի հոմոպոլինուկլեոտիդային հաջորդականությունների նկատմամբ։ Մասնավորապես, հայտնաբերվել է, որ ՄԿ-ը, ի տարբերություն միաշղթա poly(dA)-ի, poly(rU)-ի և poly(dT)-ի, վառ արտահայտված հատկորոշչությամբ է կապվում միաշղթա poly(rA)-ի հետ։ Տարբերություն է հայտնաբերվել նաև հիբրիդային երկշղթա poly(rA)-poly(dT) և poly(dA)-poly(rU) պոլինուկլեոտիդների հետ ՄԿ-ի փոխազդեցության դեպքում։

STUDY OF FLUORESCENT PROPERTIES OF METHYLENE BLUE COMPLEXES WITH RIBO- AND DEOXYRIBO-POLYNUCLEOTIDES

A.P. ANTONYAN, M.A. PARSADANYAN, A.H. KARAPETYAN, P.O. VARDEVANYAN

A study of the fluorescent properties of MS complexes with ss-poly(dA), poly(rU), poly(rA) and poly(dT), as well as hybrid ds-structures poly(rA)-poly(dT) and poly(dA)-poly(rU) was carried out. Based on changes in fluorescence and absorption spectra, it was revealed that this ligand exhibits unequal affinity homopolynucleotide sequences. Particularly, it was found that MS binds to poly(rA) with pronounced specificity, compared to ss-poly(dA), poly(rU) and poly(dT). The difference was also obtained for the interaction of MS with hybrid ds-polynucleotides poly(rA)-poly(dT) and poly(dA)-poly(rU).

Известия НАН Армении, Физика, т.60, №1, с.149–156 (2025) УДК 541.64 DOI: 10.54503/0002-3035-2025-60.1-149

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПОРФИРИНОВ ТОЕРуР4 И ZnTOEPyP4 C G-КВАДРУПЛЕКСАМИ

И.В. ВАРДАНЯН^{*}, М.Х. БАДАЛЯН, Ц.М. ДЖОМАРДЯН, Е.Б. ДАЛЯН, С.Г. АРУТЮНЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: ishkhan@ysu.am

(Поступила в редакцию 06 декабря 2024 г.)

В работе исследовано взаимодействие двух катионных порфиринов мезотетра-(4N-оксиэтилпиридил) порфирина (ТОЕРуР4) и его Zn-содержащего производного (ZnTOEPyP4) на G-квадруплексную конформацию последовательности d[5'-A(GGGTTA)₃GGG-3'] теломерной ДНК человека методами кругового дихроизма и оптической спектрофотомерии. Анализ полученных результатов показывает, что существует одно место связывания с этими порфиринами, но оно различается в зависимости от типа порфирина. Предполагается, что TOEPyP4 связывается параллельно плоскости G-квартета на внешней поверхности G-квадруплекса (внешний π - π * стекинг), а связывание ZnTOEPyP4 также происходит внешне, но в желобке боковой поверхности G-квадруплекса (желобковое связывание).

1. Введение

Известно, что в особых областях двухцепочечной геномной ДНК (таких как теломеры, промоторные области онкогенов, центромеры и др.) присутствуют Gобогащенные и C-обогащенные короткие регулярные последовательности, способные формировать четырехцепочечные структуры G-квадруплекса или I-мотива [1–6]. Формирование таких структур в клетке создает стерические препятствия для работы теломеразы или PHK-полимеразы, что приводит к гибели клетки. Такие тетраплексные структуры используются клеткой в качестве молекулярных переключателей для регуляции клеточных процессов в физиологических условиях. Открытие этого факта стало основой для формирования нового направления противоопухолевой терапии, основанного на целенаправленной генерации или разрушении G-квадруплексов и I-мотивов в выбранной области ДНК [7–12].

Одним из направлений этих исследований является поиск лигандов, стабилизирующих G-квадруплексы и I-мотивы в теломерной ДНК человека для блокирования активности теломеразы [7–19]. Например, было показано, что катионный порфирин мезо-тетра-(N4-метилпиридил) порфирин, TMPyP4, является лигандом G-квадруплекса, хотя он обладает ограниченной селективностью к G-квадруплексам по сравнению с дуплексом [13]. Интерес к исследованию и созданию селективных лигандов из класса порфиринов по-прежнему остается актуальным и вызывает постоянное внимание. [13–19]. Класс порфиринов представляет собой соединения с высокой биологической активностью, многие из которых проявляют противоопухолевые, противовирусные и противогрибковые свойства [20–24]. Многочисленные исследования показали, что порфирины могут взаимодействовать с ДНК как путем интеркаляции, так и путем внешнего связывания с желобком вдоль молекулы ДНК [25–27]. Механизм взаимодействия порфирина с ДНК зависит как от типа центрального металла и периферических заместителей в порфирине, так и от внешних условий (*pH* и ионной силы).

В настоящей работе мы исследовали взаимодействие 22-мерной гуанин-обогащенной регулярной последовательности теломерной ДНК человека d[5`-A(GGGTTA)3GGG-3`] (Tel22G) в конформации G-квадруплекса с мезо-тетра-(4N-оксиэтилпиридил) порфирином (TOEPyP4) и его Zn-содержащим производным (ZnTOEPyP4) (рис.1).



Рис.1. Структуры (a) ТОЕРуР4 и (b)ZnTOEPуP4, боковые заместители R=CH₂-CH₂-OH, центральный металл M = Zn, аксиальный лиганд Y = H₂O.

2. Материалы и методы исследования

В настоящем исследовании использовалась 22-мерная гуанин-обогащенная регулярная последовательность теломерной ДНК человека d[5'-A(GGGTTA)3GGG-3'] (Tel22G), приобретенная у компании «Integrated DNA Technologies», Inc. (USA).

Использованные в данной работе водорастворимый катионный мезо-тетра-(4N-оксиэтилпиридил) порфирин, ТОЕРуР4, (Mw = 980 Да) и его Zn-производное, ZnTOEPyP4, (Mw = 1003 Да) были синтезированы доктором Р. Казаряном в Ереванском государственном медицинском университете по методике, описанный в работе [28].

Эксперименты проводились в 0.1 BPSE буфере (1 BPSE = $10 \text{ MM NaH}_2PO_4 + 10 \text{ MM Na}_2HPO_4 + 0.1 \text{ MM Na}_2EDTA + 0.1 \text{ MM NaN}_3$), *pH* 7.

Концентрация Tel22G определялась спектрофотометрическим измерением поглощения на 260 нм при 80°C с использованием следующего коэффициента экстинкции: $\varepsilon_{260} = 228500 \text{ M}^{-1} \text{сm}^{-1}$ для Tel22G на спектрофотометре UV/Vis Lambda-800 (Perkin Elmer, USA). Конформационные изменения Tel22G изучались методом кругового дихроизма с использованием КД спектрофотометра DSM 20 (Olis, США). Использовались кварцевые кюветы объемом 3 мл и оптическим путем 1 см.

Растворы исходных концентраций Tel22G (3.06×10^{-6} M) и порфиринов (10^{-3} M) готовились за 1 час до эксперимента. Растворы, содержащие порфирины, хранились в темноте во избежание фотохимической модификации порфиринов. Диапазон концентраций порфирина на одну молекулу TelG составляет 0.001 < r < 3.78, где $r = C_{\text{porph}}/C_{\text{TelG}}$. При расчете параметров связывания порфиринов с G-квадруплексом использовалась модель Скетчарда для случая, когда имеется один независимый тип центра связывания [14].

Уравнение, описывающее изотерму адсорбции, имеет следующий вид:

$$\frac{r_b}{C_{\text{free}}} = K(n - r_b), \qquad (1)$$

где K – константа связывания, n – число мест связывания на одной молекуле G-квадруплекса. В уравнении (1) C_{free} – концентрация свободных порфиринов, определяемая из спектров титрования по следующей формуле:

$$C_{\rm free} = \frac{C_0 (A - A_{\rm min})}{(A_{\rm max} - A_{\rm min})},\tag{2}$$

где C_0 – общая концентрация порфирина в растворе, A_{max} – поглощение при концентрации свободного порфирина, A_{min} – поглощение при концентрации полностью связанного порфирина и A – поглощение при данной концентрации порфирина. r_{b} – число молекул порфирина, связанных с 1 молекулой G-квадруплекса: $r_{\text{b}} = C_{\text{b}} / C_{\text{TelG}}$, где C_{b} является концентрацией связанных порфиринов и $C_{\text{b}} = C_0 - C_{\text{free}}$.

Для обработки экспериментальных данных пользовались программой OriginPro9.

3. Результаты и их обсуждение

3.1. Спектры кругового дихроизма

Нашей целью было изучение влияния порфиринов на G-квадруплексную конформацию Tel22G. Наилучшим способом подтверждения формирования G-квадруплексной структуры последовательностью d[5`-A(GGGTTA)₃GGG-3`] (Tel22G) является исследование КД-спектров. На рис.2 представлены КД-спектры Tel22G при наличии различных концентраций обоих порфиринов. Кривая 1 на рис.2a,b представляет собой КД-спектр Tel22G без порфирина. Пики КД-спектра Tel22G проявляются при 295 и 265 нм, что позволяет подтвердить наличие «корзинообразной» конформации G-квадруплекса в данных экспериментальных условиях [1–3]. Далее мы пошагово добавляли небольшие количества порфиринов к тому же раствору G-квадруплекса (КД-титрование G-квадруплекса порфиринами). Полученные спектры представлены на рис.2a,b.

Как видно из рис.2, в видимой области КД-спектра, где ДНК прозрачна, добавление порфиринов вызывает появление новой индуцированной полосы (ИКД). Свободные порфирины, будучи планарными симметричными соединениями, не вызывают эффект Коттона, который наблюдается при характерном изменении дисперсии вращения плоскости поляризации света и/или кругового дихроизма вблизи полосы поглощения вещества. Следовательно, асимметричное



Рис.2. КД-спектры комплексов G-квадруплекса с порфиринами при различных относительных концентрациях порфиринов r на 1 молекулу Tel22G. (а) Для TOEPyP4 значения r, соответствующие кривым от 1 до 10, изменяются от 0 до 3.78. (b) Для ZnTOEPyP4 значения r, соответствующие кривым от 1 до 6, изменяются от 0 до 1.52.

окружение нуклеиновых кислот, с которыми взаимодействуют порфирины, заставляет их складываться асимметрично на ДНК, что индуцирует ИКД-спектр комплекса.

Другими словами, КД-спектр комплекса можно разделить на два диапазона: УФ и видимые (ИКД) спектры. УФ область отражает изменения в структуре Gквадруплекса. Как видно из рис.2, при увеличении *r* происходит уменьшение характерной для G-квадруплексов полосы θ при 295 нм. Это означает, что увеличение концентрации порфирина приводит к разрушению G-квадруплекса. Особенно сильный эффект наблюдается для планарного безметалльного TOEPyP4 (рис.2а).

Для Zn-содержащего ZnTOEPyP4 эффект гораздо слабее (рис.2b). Это предполагает, что данные порфирины по-разному взаимодействуют с квадруплексом.

Особый интерес представляет видимая часть КД-спектров (ИКД), связанная с порфиринами. Полоса ИКД в области 400–500 нм связана с наиболее интенсивной характеристической полосой поглощения порфиринов (полосой Соре), которая после связывания с ДНК становится оптически активной. На рис.2 показано, что ИКД-спектры комплексов G-квадруплекс-ТОЕРуР4 имеют отрицательный знак и быстро меняются с увеличением концентрации порфирина. Что касается комплексов G-квадруплекс-ZnTOEPyP4, то ИКД-спектры имеют положительный знак, и их интенсивность незначительно увеличивается с концентрацией ZnTOEPyP4.

Полученный результат показывает, что механизмы связывания принципиально различны, и это обусловлено структурой порфиринов. Одна из 5 координационных связей атома Zn в ZnTOEPyP4 выходит из плоскости порфирина и делает невозможным режим интеркаляционного связывания, в отличие от планарного TOEPyP4. Это приводит к тому, что ZnTOEPyP4 может связываться с Gквадруплексом только посредством внешнего связывания. В результате можно предположить, что TOEPyP4 связывается путем интеркаляции или внешнего стекинга, в то время как ZnTOEPyP4 связывается внешне по стерическим причинам. Если бы такие изменения в ИКД-спектре наблюдались в случае двухцепочечной ДНК, то вывод был бы утвердительным, однако для такого утверждения о квадруплексной структуре необходимы дополнительные исследования.

3.2. УФ/видимая спектрофотометрия

Дополнительную информацию о взаимодействии G-квадруплексов с порфиринами можно получить, изучая зависимость изменения оптической плотности раствора порфирина в полосе Соре при титровании G-квадруплексом. Раствор G-квадруплекса добавлялся к раствору порфирина небольшими порциями и после каждого добавления регистрировался УФ/видимый спектр. Процесс титрования продолжался до тех пор, пока спектры не переставали изменяться (наступало насыщение). На рис.3 показаны спектры поглощения полосы Соре TOEPyP4 ($\lambda_{max} = 422$ нм) и ZnTOEPyP4 ($\lambda_{max} = 440$ нм) после добавления определенного количества G-квадруплекса.



Рис.3. Спектры поглощения порфиринов при их титровании с G-квадруплексами Tel22G. (а) Для TOEPyP4 относительная концентрация *r*, соответствующая кривым от 2 до 10, изменяется от 227.7 до 8.6. (b) Для ZnTOEPyP4 значения *r*, соответствующие кривым от 2 до 9, изменяются от 106.2 до 8.8.

В обоих случаях, как видно из спектров поглощения, добавление Tel22G к раствору порфирина приводит к уменьшению максимума поглощения (показано стрелкой) и батохромному сдвигу длины волны максимума полосы Соре. Уменьшение интенсивности поглощения и батохромный сдвиг максимума указывают на образование комплексов G-квадруплекс–порфирин. На основе полученных спектральных данных были построены изотермы связывания порфиринов TOEPyP4 и ZnTOEPyP4 с G-квадруплексом, как зависимость концентрации свободного лиганда (порфирина) [$C_{\rm free}$] от относительной концентрации порфирина, связанного с G-квадруплексом [$r_{\rm b}$] (рис.4).

Приведенные на рис.4 изотермы связывания ТОЕРуР4 и ZnTOEРуР4 порфиринов с G-квадруплексом фитированны по формуле (1) [14]. По результатам фитирования были получены параметры связывания: константа связывания K и n – число мест связывания на одной молекуле G-квадруплекса. При связывании TOEPyP4 с G-квадруплексом K и n соответственно равны 1.011×10^7 M⁻¹ и 0.92, а в случае ZnTOEPyP4 – 9.05×10^6 M⁻¹ и 0.83, которые находятся в хорошем согласии с результатами, полученными ранее для других порфиринов [14].



Рис.4. Изотермы связывания ТОЕРуР4(■) и ZnTOEPyP4 (▲) с G-квадруплексами после фитирования значений, полученных по формуле (1).

Как видно из этих значений, константа связывания TOEPyP4 с G-квадруплексом больше, чем в случае ZnTOEPyP4, а значения чисел мест связывания позволяют сделать вывод о наличии на G-квадруплексе одного места связывания для порфиринов (TOEPyP4 или ZnTOEPyP4). Сравнивая этот результат с полученным методом КД результатом, можно заключить, что TOEPyP4 и ZnTOEPyP4 связываются в различных местах квадруплекса. Этот вывод позволяет предположить (по аналогии со связыванием порфиринов с ДНК [19–23]), что плоский TOEPyP4, константа связывания которого выше, связывается параллельно плоскости G-квартетов на внешней поверхности G-квадруплекса (внешний стекинг), а объемный ZnTOEPyP4 связывается с боковой поверхностью G-квадруплекса в желобке (внешнее желобковое связывание).

4. Заключение

Впервые было исследовано взаимодействие ТОЕРуР4 и ZnTOEPyP4 порфиринов с G-квадруплексами. Полученные данные указывают на то, что константа связывания TOEPyP4 с G-квадруплексом выше, чем у ZnTOEPyP4, а значения *n* свидетельствуют о наличии одного места связывания для порфиринов на молекуле G-квадруплекса. Сравнение результатов, полученных методом кругового дихроизма, подтверждает, что TOEPyP4 и ZnTOEPyP4 связываются в различных участках G-квадруплекса. Было выявлено, что TOEPyP4, имеющая плоскую структуру и обладающая более высокой константой связывания, связывается параллельно плоскости G-квартетов на внешней поверхности квадруплекса, что соответствует внешнему стекингу. В то же время объемный ZnTOEPyP4 связывается с боковой поверхностью G-квадруплекса в желобке, реализуя внешнее желобковое связывание. Таким образом, результаты настоящего исследования расширяют понимание механизмов взаимодействия порфиринов с Gквадруплексами и могут быть полезны для разработки и выявлении новых молекулярных зондов или терапевтических агентов. Данная работа была поддержана Комитетом по высшему образованию и науке Министерства образования, науки, культуры и спорта РА в рамках гранта № 21T-1F115

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Y. Qin, L.H. Hurley. Biochimie, 90, 1149 (2008).
- 2. J.L. Huppert. Chem. Soc. Rev., 37, 1375 (2008).
- 3. J.L. Huppert. FEBS J., 277, 3452 (2010).
- 4. N. Sugimoto. Int. Rev. Cell. Mol. Biol., 307, 205 (2014).
- A. De Cian, L. Lacroix, C. Douarre, N. Temime-Smaali, C. Trentesaux, J.F. Riou, J.L. Mergny. Biochimie, 90, 131 (2008).
- 6. L.H. Hurley. Nat. Rev. Cancer, 2, 188 (2002).
- 7. L. Oganesian, T.M. Bryan. BioEssays, 29, 155 (2007).
- 8. S. Balasubramanian, L.H. Hurley, S. Neidle. Nat. Rev. Drug Discovery, 10, 261 (2011).
- 9. N. Maizels. EMBO Rep., 16, 910 (2015).
- 10. T.A. Brooks, S. Kendrick, L. Hurley. FEBS J., 277, 3459 (2010).
- 11. V. Sanchez-Martin. DNA, 3, 1 (2023).
- 12. G.W. Collie, G.N. Parkinson. Chem. Soc. Rev., 40, 5867 (2011).
- 13. H. Han, D.R. Langley, A. Rangan, L.H. Hurley. J. Am. Chem. Soc., 123, 8902 (2001).
- 14. C. Wei, G. Jia, J. Zhou, G. Han, C. Li. Phys. Chem. Chem. Phys., 11, 4025 (2009).
- 15. C. Bruckner. J. Chem. Educ., 81, 3060 (2004).
- 16. D.R. McMillin, K.M. McNett. Chem. Rev., 98, 1201 (1998).
- 17. C. Wei, G. Jia, J. Yuan, Z. Feng, C. Li. Biochemistry, 45, 6681 (2006).
- L.A. Lipscomb, F.X. Zhou, S.R. Presnell, R.J. Woo, M.E. Peek, R.R. Plaskon, L.D. Williams. Biochemistry, 35, 2818 (1996).
- 19. H. Han, D.R. Langley, A. Rangan, L.H. Hurley. J. Am. Chem. Soc., 123, 8902 (2001).
- L. Aslanyan, J. Ko, B.G. Kim, I. Vardanyan, Y.B. Dalyan, T.V. Chalikian. J. Phys. Chem. B, 121, 6511 (2017).
- Y.B. Dalyan, L.G. Aslanyan, I.V. Vardanyan. Proc. YSU A: Phys. Math. Sci., 54, 115 (2020).
- 22. M.K. Badalyan, I.V. Vardanyan, S.G. Haroutiunian, Y.B. Dalyan. ACS Omega, 8, 47051 (2023).
- 23. L. Liu, C. Ma, J.W. Wells, T.V. Chalikian. J. Phys. Chem. B, 124, 751 (2020).
- 24. T.V. Chalikian, L. Liu, R.B. Macgregor Jr. Biophys. Chem., 267, 106473 (2020).
- 25. R.J. Fiel, J.C. Howard, M.E. Mark, N.D. Gupta. Nucl. Acid Res., 6, 3093 (1979).
- 26. R.F. Pasternack, E.J. Gibbs. Metal Ions Biol. Syst., 33, 367 (1996).
- J. Monaselidze, G. Majagaladze, S. Barbakadze, D. Khachidze, M. Gorgoshidze, Y. Kalandadze, S. Haroutiunian, Y. Dalyan, V. Vardanyan. J. Biomol. Struct. Dyn., 25, 410 (2007).

28. В.Н. Мадакян, Р.К. Казарян, М.А. Хачатрян, А.С. Степанян, Т.С. Куртикян, М.Б. Ордян. Химия гетероциклических соединений, **2**, 212 (1986).

TOEPYP4 ԵՎ ZnTOEPYP4 ՊՈՐՖԻՐԻՆՆԵՐԻ ՓՈԽԱԶԴԵՑՈՒԹՅՈՒՆԸ G-ՔՈՒԱԴՐՈՒՊԼԵՔՄՆԵՐԻ ՀԵՏ

Ի.Վ. ՎԱՐԴԱՆՅԱՆ, Մ.Խ. ԲԱԴԱԼՅԱՆ, Ծ.Մ. ՋՈՄԱՐԴՅԱՆ, Ե.Բ. ԴԱԼՅԱՆ, Ս.Գ. ՀԱՐՈՒԹՅՈՒՆՅԱՆ

աշխատանքում Sdimi շրջանային դիխրոիզմի u ՈւՄ/տեսանելի սպեկտրոֆոտոմետրիայի մեթոդների միջոզով ուսումնասիրվել է մարդու տելոմերային ԴՆԹ-ի d[5-A(GGGTTA)3GGG-3] հաջորդականության G-քուադրուպլեքսի կոնֆորմացիայի վրա երկու կատիոնային պորֆիրինների՝ մեզո-տետրա-(4N-օքսիէթիյպիրիդիյ) պորֆիրինի (TOEPyP4) և դրա Zn-պարունակող ածանզյայի (ZnTOEPyP4) ազդեզությունը։ Մտացված արդյունքների վերլուծությունը ցույց է տալիս, որ կա միայն մեկ կապման տեղ այս պորֆիրինների համար, սակայն այն տարբերվում է՝ կախված պորֆիրինիզ։ Ենթադրվում է, որ TOEPyP4-ը կապվում է քառլակի հարթությանը զուգահեռ Gքուադրուպլեքսի արտաքին մակերևույթին (արտաքին π-π ստեկինգ), իսկ ZnTOEPyP4-ի կապումը նույնպես տեղի է ունենում արտաքինից, սակայն G-քուադրուպլեքսի կողմնային մակերևույթի ակոսում (ակոսային կապում)։

THE INTERACTION OF TOEPyP4 AND ZNTOEPyP4 PORPHYRINS WITH G-QUADRUPLEXES

I.V. VARDANYAN, M.KH. BADALYAN, TS.M. JOMARDYAN, Y.B. DALYAN, S.G. HAROUTIUNIAN

In the current work the methods of Circular Dichroism and UV/Vis spectrophotometry were used to study the influence of two cationic porphyrins meso-tetra-(4N-oxyethylpyridyl) porphyrin (TOEPyP4) and its Zn-containing derivative (ZnTOEPyP4) on the G-quadruplex conformation of d[5'-A(GGGTTA)₃GGG-3`] sequence of human telomeric DNA. The analysis of the obtained results indicates that there is a single binding site for these porphyrins, but it differs depending on the porphyrin. It is assumed that TOEPyP4 binds parallel to the quartet plane on the outer surface of the G-quadruplex (external π - π stacking), and the binding of ZnTOEPyP4 also occurs externally, but in the groove of the lateral surface of the G-quadruplex (groove binding).