

ISSN 1994-2354

ISSN 2304-9782



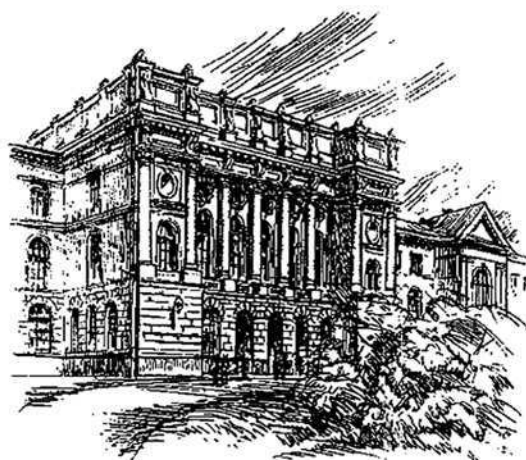
НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ ВЕДОМОСТИ

САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО
ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА



Физико-математические
науки

3 (177) 2013



НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ ВЕДОМОСТИ

САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО
ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА

Физико-математические
науки

3(177) 2013

НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ ВЕДОМОСТИ САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА

РЕДАКЦИОННЫЙ СОВЕТ

Васильев Ю.С., академик РАН, Президент СПбГПУ – председатель;
Алферов Ж.И., академик РАН – зам. председателя; *Костюк В.В.*, академик РАН;
Лагарьков А.Н., академик РАН; *Лопота В.А.*, чл.-кор. РАН; *Окрепилов В.В.*, академик РАН;
Патон Б.Е., академик РАН и НАН Украины; *Примаков Е.М.*, академик РАН;
Рудской А.И., чл.-кор. РАН; *Федоров М.П.*, академик РАН.

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

Васильев Ю.С., академик РАН, Президент СПбГПУ – главный редактор;
Арсеньев Д.Г., д-р техн. наук, профессор;
Бабкин А.В., д-р экон. наук, профессор – зам. гл. редактора;
Боронин В.Н., д-р техн. наук, профессор; *Глухов В.В.*, д-р экон. наук, профессор;
Дегтярева Р.В., д-р истор. наук, профессор; *Иванов А.В.*, д-р техн. наук, профессор;
Иванов В.К., д-р физ.-мат. наук, профессор; *Козловский В.В.*, д-р физ.-мат. наук, профессор;
Райчук Д.Ю. – зам. гл. редактора; *Юсупов Р.М.*, чл.-кор. РАН.

ФИЗИКО-МАТЕМАТИЧЕСКИЕ НАУКИ

РЕДАКЦИОННЫЙ СОВЕТ ЖУРНАЛА

Алферов Ж.И., академик РАН — председатель;
Боровков А.И., проректор по перспективным проектам;
Вариалович Д.А., академик РАН;
Глухих В.А., академик РАН;
Жуков А.Е., чл.-кор. РАН — зам. председателя;
Иванов В.К., д-р физ.-мат. наук, профессор;
Индейцев Д.А., чл.-кор. РАН;
Рудской А.И., чл.-кор. РАН — зам. председателя;
Рутберг Ф.Г., академик РАН;
Сулис Р.А., академик РАН.

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ ЖУРНАЛА

Иванов В.К., д-р физ.-мат. наук, профессор — председатель;
Антонов В.И., д-р физ.-мат. наук, профессор;
Блинов А.В., д-р физ.-мат. наук, профессор;
Капралова В.М., канд. физ.-мат. наук, доцент — отв. секретарь;
Кожевников Н.М., д-р физ.-мат. наук, профессор;
Козловский В.В., д-р физ.-мат. наук, профессор – зам. председателя;
Остряков В.М., д-р физ.-мат. наук, профессор;
Самойлов В.О., чл.-кор. РАН, профессор;
Топтыгин И.Н., д-р физ.-мат. наук, профессор;
Тропп Э.А., д-р физ.-мат. наук, профессор;
Фирсов Д.А., д-р физ.-мат. наук, профессор;
Фотиади А.Э., д-р физ.-мат. наук, профессор — зам. председателя.

Журнал с 1995 года издается под научно-методическим руководством Российской академии наук.

Журнал с 2002 г. входит в Перечень ведущих рецензируемых научных журналов и изданий, в которых должны быть опубликованы основные результаты диссертаций на соискание ученых степеней доктора и кандидата наук.

Сведения о публикациях представлены в Реферативном журнале ВИНИТИ РАН, в международной справочной системе «Ulrich's Periodical Directory».

С 2008 года выпускается в составе сериального периодического издания «Научно-технические ведомости СПбГПУ» ISSN 1994-2354.

Журнал зарегистрирован Федеральной службой по надзору в сфере информационных технологий и массовых коммуникаций (Роскомнадзор). Свидетельство о регистрации ПИ № ФС77-52144 от 11 декабря 2012 г.

Подписной индекс **71823** в каталоге «Газеты. Журналы» Агентства «Роспечать».

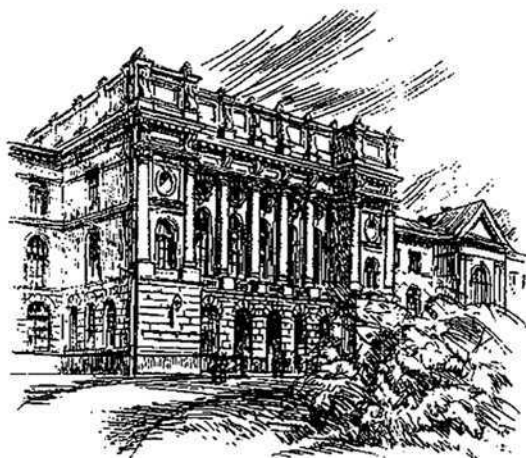
Журнал включен в базу данных «Российский индекс научного цитирования» (РИНЦ), размещенную на платформе Научной электронной библиотеки на сайте <http://www.elibrary.ru>

При перепечатке материалов ссылка на журнал обязательна.

Точка зрения редакции может не совпадать с мнением авторов статей.

Адрес редакции и издательства: Россия, 195251, Санкт-Петербург, ул. Политехническая, д. 29.
Тел. редакции (812) 294-22-85.

THE MINISTRY OF EDUCATION AND SCIENCE OF THE RUSSIAN FEDERATION



ST. PETERSBURG STATE POLYTECHNICAL UNIVERSITY JOURNAL

Physics
and Mathematics

3(177) 2013

Polytechnical University Publishing House
Saint Petersburg
2013

ST. PETERSBURG STATE POLYTECHNICAL UNIVERSITY JOURNAL

EDITORIAL COUNCIL

Yu.S. Vasiliev – full member of RAS, President of St. Petersburg State Polytechnical University, editor-in-chief;
Zh.I. Alferov – full member of RAS; *V.V. Kostiuk* – full member of RAS;
A.N. Lagarkov – full member of RAS;
V.A. Lopota – corresponding member of RAS; *V.V. Okrepilov* – full member of RAS;
B.E. Paton – full member of RAS and NAS of Ukraine; *E.M. Primakov* – full member of RAS;
A.I. Rudskoy – corresponding member of RAS;
M.P. Fedorov – full member of RAS.

EDITORIAL BOARD

Yu.S. Vasiliev – full member of RAS, President of St. Petersburg State Polytechnical University, editor-in-chief;
D.G. Arseniev – Dr.Sc.(tech.), prof.;
A.V. Babkin – Dr.Sc. (econ.), prof., deputy editor-in-chief; *V.N. Boronin* – Dr.Sc.(tech.), prof.;
V.V. Glukhov – Dr.Sc. (econ.), prof.;
R.V. Degtyareva – Dr.Sc. (history), prof.;
A.V. Ivanov – Dr.Sc.(tech.), prof.; *V.K. Ivanov* – Dr.Sc.(phys.-math.), prof.;
V.V. Kozlovsky – Dr.Sc.(phys.-math.), prof.; *D.Yu. Raychuk* – deputy editor-in-chief;
R.M. Yusupov – corresponding member of RAS.

PHYSICS AND MATHEMATICS

EDITORIAL COUNCIL JOURNAL

Zh.I. Alferov – full member of RAS, head of the editorial council;
A.I. Borovkov – vice-rector for perspective projects;
D.A. Varshalovich – full member of RAS; *V.A. Glukhikh* – full member of RAS;
A.Ye. Zhukov – corresponding member of RAS, deputy head of the editorial council;
V.K. Ivanov – Dr.Sc.(phys.-math.), prof.; *D.A. Indeitsev* – corresponding member of RAS;
A.I. Rudskoy – corresponding member of RAS, deputy head of the editorial council;
Ph.G. Rutberg – full member of RAS;
R.A. Suris – full member of RAS.

EDITORIAL BOARD JOURNAL

V.K. Ivanov – Dr.Sc.(phys.-math.), prof. – head of the editorial board;
V.I. Antonov – Dr.Sc.(phys.-math.), prof.; *A.V. Blinov* – Dr.Sc.(phys.-math.), prof.;
V.M. Kapralova – Candidate of phys.-math. sc., associate prof. – executive secretary;
N.M. Kozhevnikov – Dr.Sc.(phys.-math.), prof.;
V.V. Kozlovsky – Dr.Sc.(phys.-math.), prof. – deputy head of the editorial board;
V.M. Ostryakov – Dr.Sc.(phys.-math.), prof.; *V.O. Samoilov* – corresponding member of RAMS, prof.;
I.N. Toptygin – Dr.Sc.(phys.-math.), prof.; *E.A. Tropp* – Dr.Sc.(phys.-math.), prof.;
D.A. Firsov – Dr.Sc.(phys.-math.), prof.;
A.E. Fotiadi – Dr.Sc.(phys.-math.), prof. – deputy head of the editorial board.

The journal is published under the scientific and methodical guidance of RAS since 1995.

The journal is included in the List of leading peer-reviewed scientific journals and other editions to publish major findings of theses for the research degrees of Doctor of Sciences and Candidate of Sciences.

The publications are presented in the VINITI RAS Abstract Journal and Ulrich's Periodical Directory International Database.

The journal is published since 2008 as part of the periodical edition 'Nauchno-tehnicheskie vedomosti SPb-GPU' (ISSN 1994-2354).

The journal is registered with the Federal Service for Supervision in the Sphere of Telecom, Information Technologies and Mass Communications (ROSKOMNADZOR). Certificate ПИ № ФС77-52144 issued December 11, 2012.

Subscription index **71823** in the «Journals and Magazines» catalogue, Rospechat agency.

The journal is in the Russian Science Citation Index (RSCI) database.

© Scientific Electronic Library (<http://www.elibrary.ru>).

No part of this publication may be reproduced without clear reference to the source.

The views of the authors may not represent the views of the Editorial Board.

Address: 195251 Politekhnicheskaya St. 29, St. Petersburg, Russia.

Phone: (812) 294-22-85.

© St. Petersburg State Polytechnical University, 2013

Содержание

Физика конденсированного состояния

Шаганов А.П., Вахрушев С.Б., Филимонов А.В., Овада К. Использование когерентного синхротронного излучения для изучения процессов формирования полярных нанобластей в модельном сегнетоэлектрике релаксоре PMNPT10	9
Комарова О.С., Мартынова О.А., Гасумянц В.Э. Влияние легирования церием на параметры энергетического спектра в системе $Nd_{2-x}Ce_xCuO_y$	18
Вейс А.Н., Житинская М.К., Лукьянова Л.Н., Кутасов В.А. Особенности энергетического спектра теллурида висмута по данным оптических измерений	29
Борисов В.Л., Борисова М.Э. Определение подвижности носителей заряда в прозрачной сегнетокерамике	42
Цакаев А.В., Кочерешко В.П. Эффекты пространственной дисперсии экситонов в квантовых ямах селенида цинка	48
Пащенко В.П. Управляемый фононный кристалл на поверхностных акустических волнах на основе индуцированных периодических доменных структур	55
Козырев Д.С., Бурбаев Т.М. Желто-зеленая фотолюминесценция электронно-дырочной жидкости в туннельно-прозрачных кремниево-германиевых слоях кремниевых гетероструктур	60

Математическое моделирование физических процессов

Абрамов А.Г., Ковалёв Г.А., Смирнов Е.М. Численное моделирование циркуляции паровоздушной среды и сопутствующей конденсации на ряде вертикальных трубок	69
--	----

Атомная физика, физика кластеров и наноструктур

Верховцев А.В., Король А.В., Соловьёв А.В. Теоретическое исследование электронных возбуждений при фотоионизации наноразмерных углеродных соединений	80
Скублов А.С., Совков В.Б., Иванов В.С. Наблюдение и анализ триплетных состояний тяжелых димеров щелочных металлов	92

Приборы и техника физического эксперимента

Серебряков А.С., Мороз А.П., Бердников Я.А., Миллер М.Б., Ефремов Ю.В., Хрунов В.С. Особенности амплитудных спектров кремниевого детектора гамма-излучения	99
Бердников Я.А., Бердников А.Я., Евсеев В.А., Мифтахов Н.М., Никулин В.Н., Самсонов В.М., Тарасенкова О.П. Модернизация мюонного плеча и поддержка пучковой трубы в эксперименте ALICE на Большом адронном коллайдере	106
Аронова Е.С., Емельянов В.М., Шварц М.З. Прогнозирование энергопроизводительности многопереходных фотопреобразователей A^3V^5 с оптическими концентраторами в различных географических районах	115
Мишин М.В., Александров С.Е. Распределение электрического потенциала в реакторе с удаленной плазмой атмосферного давления	123
Бабенко Т.Н., Голяева А.Ю., Лобанов П.Ю., Мануйлович И.С., Сидорюк О.Е. Оценка качества деталей из оптического ситалла посредством лазерной фазосдвигающей интерферометрии	130

Демкин В.Н., Степанов В.А., Шадрин М.В. Системы быстрого прототипирования с лазерным сканированием	136
---	-----

Физическая электроника

Емельянов А.Ю., Габдуллин П.Г., Архипов А.В., Гнучев Н.М. Морфология поверхности и полевая эмиссия углеродных пленок, полученных методом магнетронного напыления	144
---	-----

Физическая оптика

Кизеветтер Д.В., Ильин Н.В. Распределения интенсивности света вблизи выходного торца волоконного световода при наличии оптических вихрей	151
Князьков А.В. Поляризационно-оптическая модуляция света	156
Арбузов В.А., Буфетов Н.С., Алюкаева О.З. Определение плотности и концентрации водных растворов солей оптическим способом (на примере бромида лития)	162

Биофизика и медицинская физика

Морозова Н.Е., Ведяйкин А.Д., Сабанцев А.В., Побегалов Г.Е., Мурашов С.В., Ходорковский М.А. Формирование мембранных тубулярных структур из гепатоцитов человека	167
Скворцов Н.В., Самойлов В.О., Ларионов И.В., Болдырев А.Г. Эффективный сорбент для элиминации эндотоксина в биопрепаратах генно-инженерного генеза и биологических жидкостях	177

Физика молекул

Никонорова Н.А., Капралова В.М., Кастро Р.А., Журавлев Д.А. Диэлектрическая релаксация привитых полиимидов с длинными политретбутилметакрилатными боковыми цепями	182
--	-----

Математика

Алексеев С.Н., Шемякина Т.А., Донцова М.В. Условия нелокальной разрешимости систем дифференциальных уравнений в частных производных первого порядка	190
--	-----

Механика

Горев Б.В., Панамарев В.А. Метод интегральных характеристик для расчета изгиба элементов конструкций	202
Ларичкин А.Ю., Горев Б.В. Построение сдвиговых деформаций ползучести из чистого кручения сплошных круглых валов	212
Ганин П.Г., Шмидт А.А. Оценка диаметра наименьших дочерних капель с учетом числа испытаний на дробление наибольших капель в аппарате с перемешиванием	220

Теоретическая физика

Санин А.Л., Семёнов Е.А. Квантовые двумерные осцилляторы с потенциалом связи Паллена – Эдмондса	230
--	-----

Астрофизика

Чариков Ю.Е., Глобина В.И., Скларова Е.М. Спектры временных задержек жесткого рентгеновского излучения солнечных вспышек по данным спектрометра BATSE	237
--	-----

Хроника

Морачевский А.Г., Фирсова Е.Г. Академик Павел Иванович Вальден (к 150-летию со дня рождения)	245
---	-----

Contents

Condensed matter physics

Shaganov A.P., Vakhrushev S.B., Filimonov A.V., Ohwada K. <i>Coherent X-ray scattering as technique of nanoregions formation study in model PMNPT10 relaxor</i>	9
Komarova O.S., Martynova O.A., Gasumyants V.E. <i>Cerium doping influence on the energy spectrum parameters in the $Nd_{2-x}Ce_xCuO_y$ system</i>	18
Veis A.N., Zhitinskaya M.K., Lukyanova L.N., Kutasov V.A. <i>Peculiarities of bismuth telluride energy spectrum from optical measurements data</i>	29
Borisov V.L., Borisova M.E. <i>The determination of the carrier mobility in transparent ferroelectric ceramics</i>	42
Tsakaev A.-V.V., Kochereshko V.P. <i>Effects of exciton spatial dispersion in zinc selenide quantum wells</i>	48
Pashchenko V.P. <i>Controlled surface acoustic wave phononic crystal based on induced periodic domains</i>	55
Kozyrev D.S., Burbaev T.M. <i>Electron-hole liquid yellow-green photoluminescence in SiGe tunnel-transparent layers of silicon heterostructures</i>	60

Simulation of physical processes

Abramov A.G., Kovalev G.A., Smirnov E.M. <i>Numerical simulation of circulation of steam-air mixture and film condensation on series of vertical tubes</i>	69
---	----

Atom physics and physics of clusters and nanostructures

Verkhovtsev A.V., Korol A.V., Solov'yov A.V. <i>Theoretical investigation of electron excitations in photoionization of nanoscale carbon-based systems</i>	80
Skublov A.S., Sovkov V.B., Ivanov V.S. <i>Triplet states of heavy alkali metal dimers: observation and analysis</i>	92

Experimental technique and devices

Serebryakov A.S., Moroz A.P., Berdnikov Ya.A., Miller M.B., Efremov Yu.V., Khrunov V.S. <i>The features of the silicon gamma-ray detector amplitude spectra</i>	99
Berdnikov Ya.A., Berdnikov A.Ya., Yevseyev V.A., Miftakhov N.M., Nikulin V.N., Samsonov V.M., Tarasenkova O.P. <i>Muon arm upgrade and beam pipe support in ALICE experiment at LHC</i>	106
Aronova E.S., Emelyanov V.M., Shvarts M.Z. <i>Prediction of energy performance of multijunction A^3B^5 photoconverters with optical concentrators in different geographic regions</i>	115
Mishin M.V., Alexandrov S.E. <i>Electrical potential distribution along the reactor with atmospheric pressure remote plasma</i>	123
Babenko T.N., Golyaeva A.Yu., Lobanov P.Yu., Manuylovich I.S., Sidoryuk O.E. <i>Quality evaluation for optical glass-ceramics parts using laser phase-shifting interferometry</i>	130
Demkin V.N., Stepanov V.A., Shadrin M.V. <i>Rapid prototyping systems with laser scanning</i>	136

Physical electronics

- Emelyanov A.Yu., Gabdullin P.G., Arkhipov A.V., Gnuchev N.M.** *Surface morphology and field emission of the magnetron deposited carbon films*..... 144

Physical optics

- Kiesewetter D.V., Ilyin N.V.** *The intensity distributions of the light near the output end of the optical fiber in the presence of optical vortices*..... 151
- Kniazkov A.V.** *Polarize-optical light modulation*..... 156
- Arbuzov V.A., Bufetov N.S., Aliukaeva O.Z.** *The determination of density and concentration of aqueous solutions of salts by optical way (lithium bromide as an example)*..... 162

Biophysics and medical physics

- Morozova N.E., Vedyaykin A.D., Sabantsev A.V., Pobegalov G.E., Murashov S.V., Khodorkovskiy M.A.** *Membrane tether formation from human hepatocytes*..... 167
- Skvortsov N.V., Samoilov V.O., Larionov I.V., Boldyrev A.G.** *An effective sorbent for elimination endotoxin in biological products of genetically engineered genesis and biological liquids*..... 177

Physics of molecules

- Nikonorova N.A., Kapralova V.M., Castro R.A., Zhuravlev D.A.** *Dielectric relaxation of grafted polyimides with long polytetrabutylmethacrylate side chains*..... 182

Mathematics

- Alekseenko S.N., Shemyakina T.A., Dontsova M.V.** *Nonlocal resolvability conditions for systems of the first order partial differential equations*..... 190

Mechanics

- Gorev B.V., Panamarev V.A.** *The integrated characteristics method for calculation of a bend of design*..... 202
- Larichkin A.Yu., Gorev B.V.** *The constructing shear strains from the pure torsion of round solid samples*..... 212
- Ganin P.G., Schmidt A.A.** *Estimation of diameter of the smallest secondary droplets taking into consideration a number of break up tests of the largest droplets in the apparatus with stirring*..... 220

Theoretical physics

- Sanin A.L., Semyonov E.A.** *Quantum two-dimensional oscillators with Pallen – Edmonds coupling potential*..... 230

Astrophysics

- Charikov Yu.E., Globina V.I., Skliarova E.M.** *Hard X-ray time delay spectra of solar flares: BATSE spectrometer data*..... 237

Chronicle

- Morachevskij A.G., Firsova E.G.** *Academician Pavel Ivanovich Walden (On the occasion of his 150th birthday)*..... 245

УДК 538.913: 620.22-022.53

*А.П. Шаганов, С.Б. Вахрушев,
А.В. Филимонов, К. Овада (K. Ohwada)*

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ КОГЕРЕНТНОГО СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ ПРОЦЕССОВ ФОРМИРОВАНИЯ ПОЛЯРНЫХ НАНООБЛАСТЕЙ В МОДЕЛЬНОМ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКЕ РЕЛАКСОРЕ PMNPT10

*A.P. Shaganov¹, S.B. Vakhrushev²,
A.V. Filimonov³, K. Ohwada⁴*

^{1,3} St. Petersburg State Polytechnical University
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

² Ioffe Physical-Technical Institute
26 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 194021, Russia.

⁴ Japan Atomic Energy Agency (JAEA) /SPRING-8

COHERENT X-RAY SCATTERING AS TECHNIQUE OF NANOREGIONS FORMATION STUDY IN MODEL PMNPT10 RELAXOR

В работе описывается метод диагностики нанонеоднородных материалов с использованием когерентного рентгеновского (синхротронного) излучения на примере модельного сегнетоэлектрика релаксора — магнийниобата-титаната свинца (PMNPT10). Представлены результаты экспериментов по рассеянию синхротронного излучения на образцах PMNPT10, свидетельствующие о наличии в материале очагов поляризации как ниже, так и выше температуры фазового перехода. Также представлены результаты моделирования рассеяния на простейших двумерных решетках.

НАНОНЕОДНОРОДНЫЕ МАТЕРИАЛЫ, СЕГНЕТОЭЛЕКТРИК, РЕЛАКСОР, PMNPT10, ДИАГНОСТИКА, КОГЕРЕНТНОЕ РЕНТГЕНОВСКОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ.

The paper describes a method for nanoinhomogeneous materials diagnostics using coherent X-ray (synchrotron) radiation through the example of a model ferroelectric relaxor lead magnesium niobate-lead titanate (PMNPT10). The results of X-ray scattering experiments on PMNPT10 show the presence of foci of polarization in the material both below and above the phase transition temperature. The results of modeling of scattering by simple two-dimensional lattices also are presented.

NANOINHOMOGENEOUS MATERIALS, FERROELECTRIC RELAXOR, PMNPT10, DIAGNOSTICS, COHERENT X-RAY RADIATION.

Нанонеоднородные материалы являются перспективными практически во всех областях применения. В частности, сегодня практически все пьезо- и сегнетокерамики

изготавливаются из смешанных перовскитоподобных материалов, в которых наблюдается два типа мезоскопического ближнего порядка: композиционный, связанный с

самоорганизованным химическим упорядочением, и структурный, возникающий при фазовых переходах. Последний проявляется в формировании полярных нанодоменов и нанодоменов. Подобный мезоскопический ближний порядок существует в материалах с колоссальным магнитосопротивлением (CMR) и в мультиферроиках сложного состава. На сегодняшний день в мире накоплен большой объем фактических сведений, касающихся, в первую очередь, макроскопических свойств такого рода объектов. В то же время микроскопический механизм, происходящий в указанных выше системах, далеко не полностью изучен и понят. Так, хотя хорошо установлено, что формирование полярных нанодоменов в сегнетоэлектриках сложного состава является основой их необычных физических свойств, но четкое понимание того, с чем связано формирование этих областей и каким образом происходит их дальнейшая трансформация, отсутствует. Сложности в определении мезоскопической структуры и долговременной динамики связаны с тем, что рассматриваемые объекты чрезвычайно податливы к внешним воздействиям (что и является причиной их гигантских восприимчивостей). Как следствие, применение методов зондовой микроскопии оказывается не вполне эффективным. Наряду с этим, использование электронной микроскопии также неэффективно, поскольку под действием электронного пучка происходит изменение композиционного упорядочения. В последние годы для исследования нанодоменных сегнетоэлектриков успешно использовалась дифракция когерентного рентгеновского излучения [1–3]. Применение этой же самой методики для изучения самоорганизованных полярных нанодоменов требует развития методов анализа спекл-картин в незеркальной геометрии.

Сегнетоэлектрики релаксоры

В середине 1950-х гг., в ходе систематического изучения свойств смешанных перовскитоподобных сегнетоэлектриков, в лаборатории Г.А. Смоленского были открыты соединения с принципиально новыми свойствами, которые назвали сегнетоэлек-

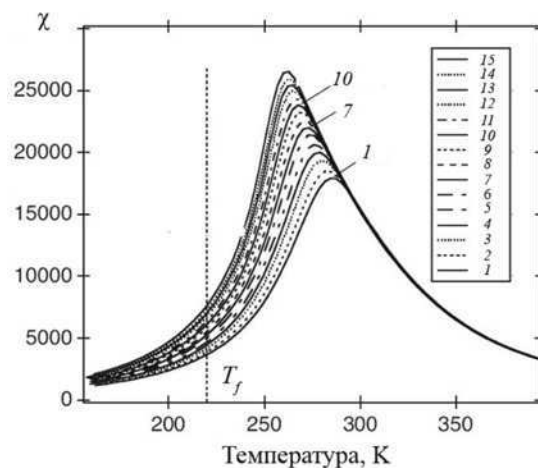


Рис. 1. Температурная характеристика диэлектрической проницаемости типичного релаксора при различных измерительных частотах, кГц:
1000 (1), 500 (2), 200 (3), 100 (4), 50 (5), 20 (6), 10 (7), 5 (8), 2 (9), 1 (10), 0,5 (11), 0,2 (12), 0,1 (13), 0,05 (14), 0,02 (15).
Температура фазового перехода $T_f \approx 220$ К показана вертикальным пунктиром

триками с размытым фазовым переходом. В дальнейшем в ходе исследования этой новой группы материалов было показано, что практически все их свойства (диэлектрические, акустические и др.) существенно зависят от измерительной частоты в широкой частотной области от тера- до миллигерц.

Такая сильная частотная зависимость свойств указывает на важную роль релаксационных процессов с аномально широким спектром времен релаксации, и в связи с этим указанные соединения были названы релаксорами. В последние годы это название стало общепринятым. Помимо высокой частотной дисперсии, для релаксоров характерны также гигантские значения диэлектрической проницаемости при температурах вблизи точки максимума (рис. 1), и все они представляют собой отличные пьезоэлектрики. Видно, что при температурах, близких к комнатным, величина диэлектрической проницаемости достигает значений около 15000, а сама точка максимума лежит выше отметки 25000. Это в 30 раз больше, чем у воды, и почти в тысячу раз больше, чем у графита. Положение же точки максимума зависит от измерительной частоты.



Со времени открытия сегнетоэлектриков релаксоров интерес к этим структурам со стороны исследователей непрерывно растет. Прежде всего это связано с потребностью в таких материалах для нужд радио- и микроэлектроники, включая чипы для ЗУ, детекторы ИК-излучения, преобразователи, микроэлектронные механические системы [2] (MEMS), радиосвязь и т. п.

Большинство релаксоров являются кубическими перовскитоподобными кристаллами с общей формулой ABO_3 , при этом позиции А и В либо А или В заселены случайным (точнее говоря, почти случайным) образом различными и, как правило, не-изовалентными ионами (рис. 2). Наиболее распространены и хорошо изучены соединения, в которых в позиции А находится свинец. Магнониобат свинца $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ (PMN) и твердые растворы на его основе (в первую очередь $PMN_{1-x}(PbTiO_3)_x$ – PMNPT) могут рассматриваться как модельные объекты для изучения поведения релаксоров в различных условиях.

Характер низкотемпературной фазы релаксоров зависит от конкретного материала и условий охлаждения. В чистом PMN ниже температуры фазового перехода $T_f \sim 250$ К формируется стеклоподобное

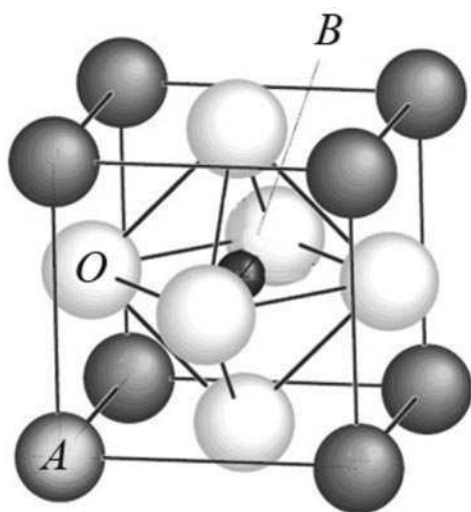


Рис. 2. Структура магнониобата свинца $PbMg_{1/3}Nb_{2/3}O_3$; общая формула большинства релаксоров ABO_3 , здесь А = Pb, В = Nb/Mg, О = О

состояние поляризации [3]. Структура кристалла остается при этом кубической. Охлаждение в электрическом поле или допирование кристалла PMN классическим сегнетоэлектриком – титанатом свинца приводит к возникновению сегнетоэлектрического состояния, что подтверждается методами рентгеновского рассеяния [4] и атомно-силовой микроскопии [5].

Существуют релаксоры и с другими структурами, например такими как $[PbB'_{1/2}B''_{1/2}O_3]$, $[A'_{1/2}A''_{1/2}BO_3]$, $[Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6]$. Релаксоры могут встречаться как в монокристаллической, так и в поликристаллической форме.

Методика эксперимента и экспериментальная установка

Взаимодействие фотонов с объемом образца может быть описано с помощью томоновской функции электрон-фотонного взаимодействия $(d\sigma/d\Omega)_{\text{тн}}$ и функции рассеяния (динамического структурного фактора) $S(\mathbf{Q}, \omega)$. Для идеальной статической решетки последняя может быть определена следующим образом:

$$NS(\mathbf{Q}, \omega) = \sum_j |f_j(\mathbf{Q})|^2 + \sum_{j \neq j'} f_j^* f_{j'} \exp[-i\mathbf{Q}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_{j'})], \quad (1)$$

где f_j – атомный фактор атома, расположенного в точке с радиус-вектором $\mathbf{r}_j$; $\mathbf{Q} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ – вектор, характеризующий разность волновых векторов падающей и рассеянной волн.

Если

$$\mathbf{Q} = (\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_{j'}) \gg 1,$$

то интерференционный член выражения (1) при усреднении даст нуль. В этом случае амплитуды вероятности для различных альтернативных взаимодействий будут складываться некогерентно:

$$NS_{inc}(\mathbf{Q}) = \sum_j |f_j(\mathbf{Q})|^2.$$

Наличие в объеме материала каких-либо дефектов (вакансии, смещенные атомы, атомы замещения и т. п.) будет приводить к изменению динамического структурного фактора. Если определить среднее значение атомного фактора рас-

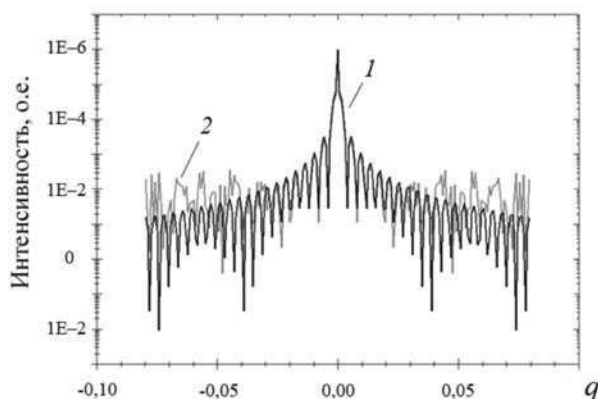


Рис. 3. Смоделированные спектры рассеяния рентгеновского излучения на одномерной решетке длиной в 10 тыс. атомов:

1 – идеальная решетка с атомным фактором $f = 1,0$;
2 – та же решетка, но 1 % ее атомов заменен на атомы с $f = 1,5$

сеяния как $\bar{f} = \frac{1}{N}(\sum f_j)$ и представить f_i в виде $f_j = \bar{f} + \delta f$, то получим выражение (1) в следующем виде:

$$NS(Q) = \left| \sum_j f_j \exp(iQr_j) \right|^2 =$$

$$= |\bar{f}|^2 \left(\frac{\sin \pi M |q_1|}{\sin \pi |q_1|} \right)^2 \left(\frac{\sin \pi M |q_2|}{\sin \pi |q_2|} \right)^2 +$$

$$+ 2 \operatorname{Re} \left[\bar{f}^* \sum_{ij} \delta f_j \exp[-iQ(r_j - r_i)] \right] +$$

$$+ \sum_{ij} \delta f_j^* \delta f_j \exp[-iQ(r_j - r_i)],$$

где $M^2 = N$ (N – число атомов); q_1, q_2 – составляющие вектора Q .

В выражении (2) первое слагаемое описывает брэгговское рассеяние на упорядоченной структуре кристалла конечного размера, второе и третье – диффузное рассеяние, связанное с наличием в кристалле различного рода дефектов и неоднородностей. Для решеток с одинаковой структурой и одним межатомным расстоянием, но различным распределением дефектов, брэгговское рассеяние будет иметь одинаковый вид, в то время как картины диффузного рассеяния будут различаться. По этой причине для анализа распределения неоднородностей структуры требуется получение спекл-картин образца в режиме диффузного рассеяния. На рис. 3 представлены смоделированные спектры рассеяния на одномерной решетке длиной в 10 тыс. атомов, имеющей дефекты и с отсутствием дефектов.

Поскольку интенсивность брэгговского пика намного превышает интенсивность диффузной составляющей, в экспериментах по диффузному рассеянию когерентного излучения фиксируется не зеркальное (брэгговское) отражение пучка, а отражение в направлении, несколько смещенном относительно брэгговского. При этом образец поворачивается на угол в несколько сотых-десятых градуса относительно зеркального угла 2θ , и детектор фиксирует только диффузно рассеянное излучение (рис. 4). Для

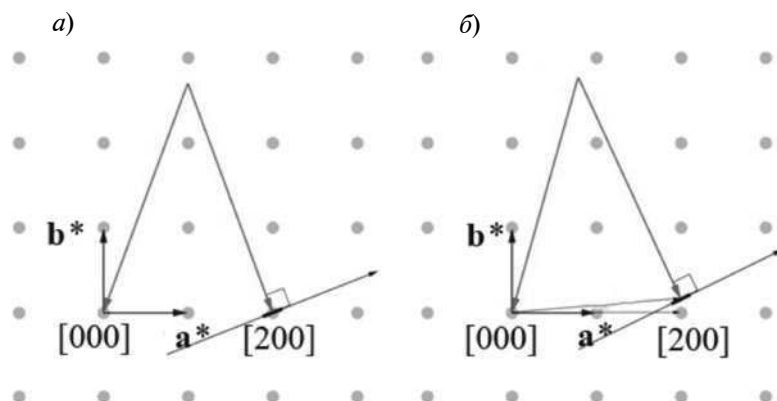


Рис. 4. Схема эксперимента по когерентному рассеянию синхротронного излучения на узле обратной решетки: «зеркальное» (брэгговское) (а) и «незеркальное» (диффузное) (б) виды рассеяния



тех же целей на пути зеркально отраженного пучка иногда устанавливают ловушку, препятствующую попаданию отраженного луча в детектор, но достаточно малую для пропускания излучения, рассеянного под большим углом.

Для исследования пространственного распределения поляризации в модельном релаксоре PMNPT10 были проведены опыты по рассеянию когерентного синхротронного излучения. Эксперименты по рассеянию были поставлены на 22-й линии синхротрона Spring-8 (Япония).

Схема эксперимента полностью аналогична представленной в работе [6]. На установке закрепляется монокристаллический образец, помещенный в криостат; излучение падает на образец и отражается в регистрирующую CCD-камеру. Изображение, регистрируемое камерой, оцифровывается и сохраняется на жестком диске ЭВМ в виде картинка размером 4000×2624 пикселя. Каждый пиксель соответствует точке $5,9 \times 5,9$ мкм. Расстояние от образца до CCD-камеры равно 1,3 м.

Измерения проводились поочередно при температурах, К: 370, 320, 300, 270, 250, 230, 200. Каждое измерение проводилось в двух

режимах: сначала исследовалось рассеяние непосредственно от узла обратной решетки [200], при этом камера регистрировала брэгговское отражение, затем образец поворачивался на $0,1$ град, и отражение уже носило диффузный характер (см. рис. 4). Так как интенсивность брэгговского пучка много выше диффузно рассеянного, время экспозиции для этих двух режимов существенно различно. Для регистрации картины в узле требовалось несколько минут, обычно не более десяти, а при повороте образца время экспозиции доходило до двух часов.

Экспериментальные данные и метод их обработки

На рис. 5 представлены спекл-картины образца PMNPT10 при различных температурах, полученные в экспериментах по когерентному рассеянию синхротронного излучения. Анализ изменения этих картин позволяет проследить температурную эволюцию распределения неоднородностей в образце. Для учета шумовой составляющей на спекл-изображениях в ходе эксперимента дополнительно замеряются картины тепловых токов регистрирующей CCD-камеры

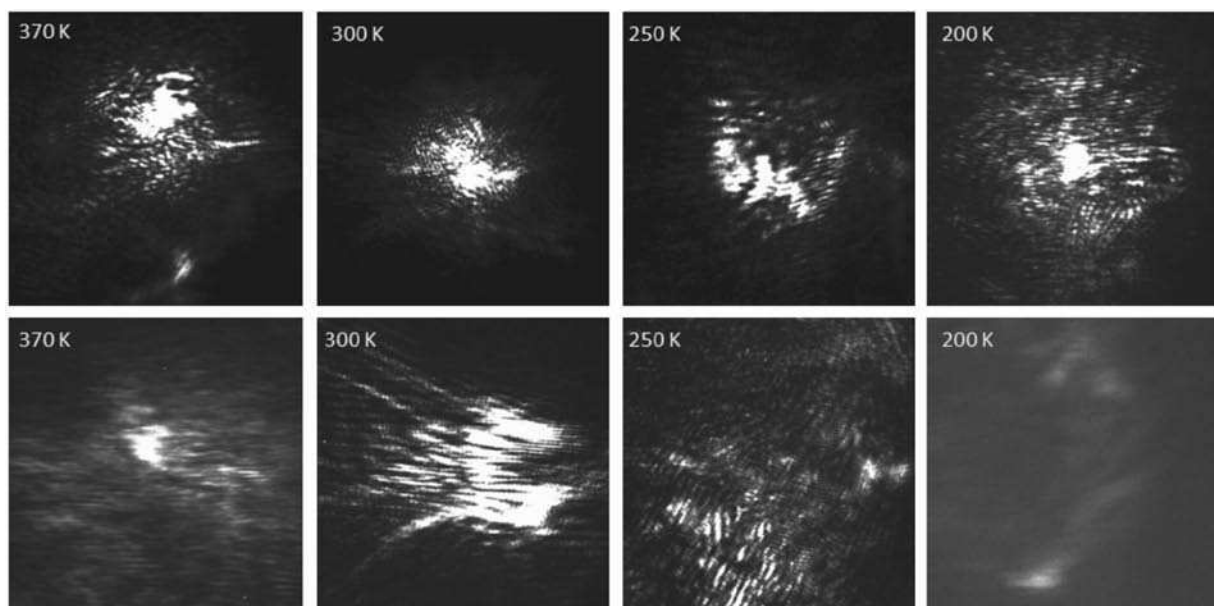


Рис. 5. Спекл-картины образца PMNPT10, полученные при различных температурах и двух видах когерентного рассеяния синхротронного излучения ($\lambda = 1,4$ Å): брэгговское (верхний ряд картин) и диффузное (нижний ряд)

для различных времен экспозиции. Полученные фоновые изображения следует вычитать из спекл-картин, полученных при соответствующих временах экспозиции образца. Кроме фоновых токов, в CCD присутствуют и индуцированные шумы. Последние появляются вследствие эмиссии тока из неосвещаемых ячеек CCD-камеры, расположенных по соседству с освещаемой, при попадании рентгеновского кванта в камеру. В результате вокруг засвеченных областей появляется шумовой ореол, для борьбы с которым используется метод простейшей редукции по заданному уровню. Для описания распределения поляризации в объеме образца рассчитывается вещественная автокорреляционная функция комплексного коэффициента пропускания [5, 7]. Она вычисляется как [5, 6]:

$$\gamma(\mathbf{r}) = \frac{F(I(\mathbf{q}))}{F(I_{sp}(\mathbf{q}))},$$

где F — оператор Фурье-преобразования; $I(\mathbf{q})$ — интенсивность картины дифракции когерентного рентгеновского излучения вдоль направления $\mathbf{q}$; $I_{sp}(\mathbf{q})$ — интенсивность картины дифракции, получаемой при идеальном зеркальном отражении.

На практике $I_{sp}(\mathbf{q})$ является по сути аппаратной функцией, обусловленной последовательной дифракцией пучка на кристалле и на выходной щели. Размер щели сопоставим с длиной пространственной когерентности пучка. Аппаратная функция может быть получена при рассеянии синхротронного излучения на образце, имеющем температуру, значительно превышающую температуру фазового перехода, или (как вариант) при рассеянии на «идеальном» монокристалле [5]. Получаемая вещественная автокорреляционная функция содержит в себе информацию об амплитудной составляющей Фурье-спектра искомой функции $\tau(\mathbf{r})$ [5, 6], но его частотная со-

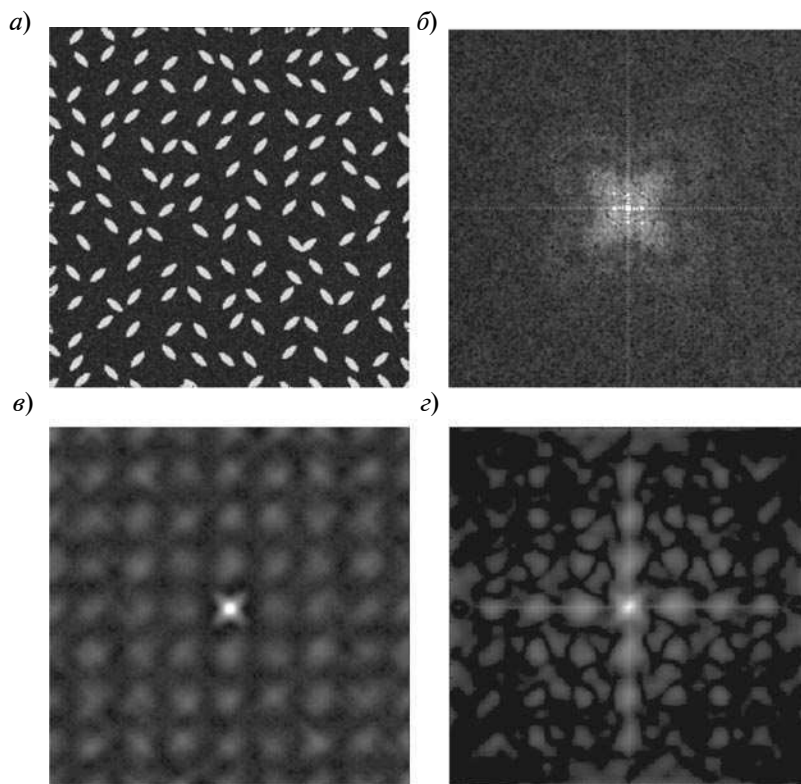


Рис. 6. Результаты моделирования рассеяния синхротронного излучения на простейшей двумерной кристаллической решетке, содержащей 200×200 двухатомных ячеек: карта атомных смещений (белым цветом выделены поляризованные области) (а); картина рассеяния на узле [200] (б); автокорреляционная функция, рассчитанная по кристаллографическим данным (в) и через Фурье-преобразование картины рассеяния (г)

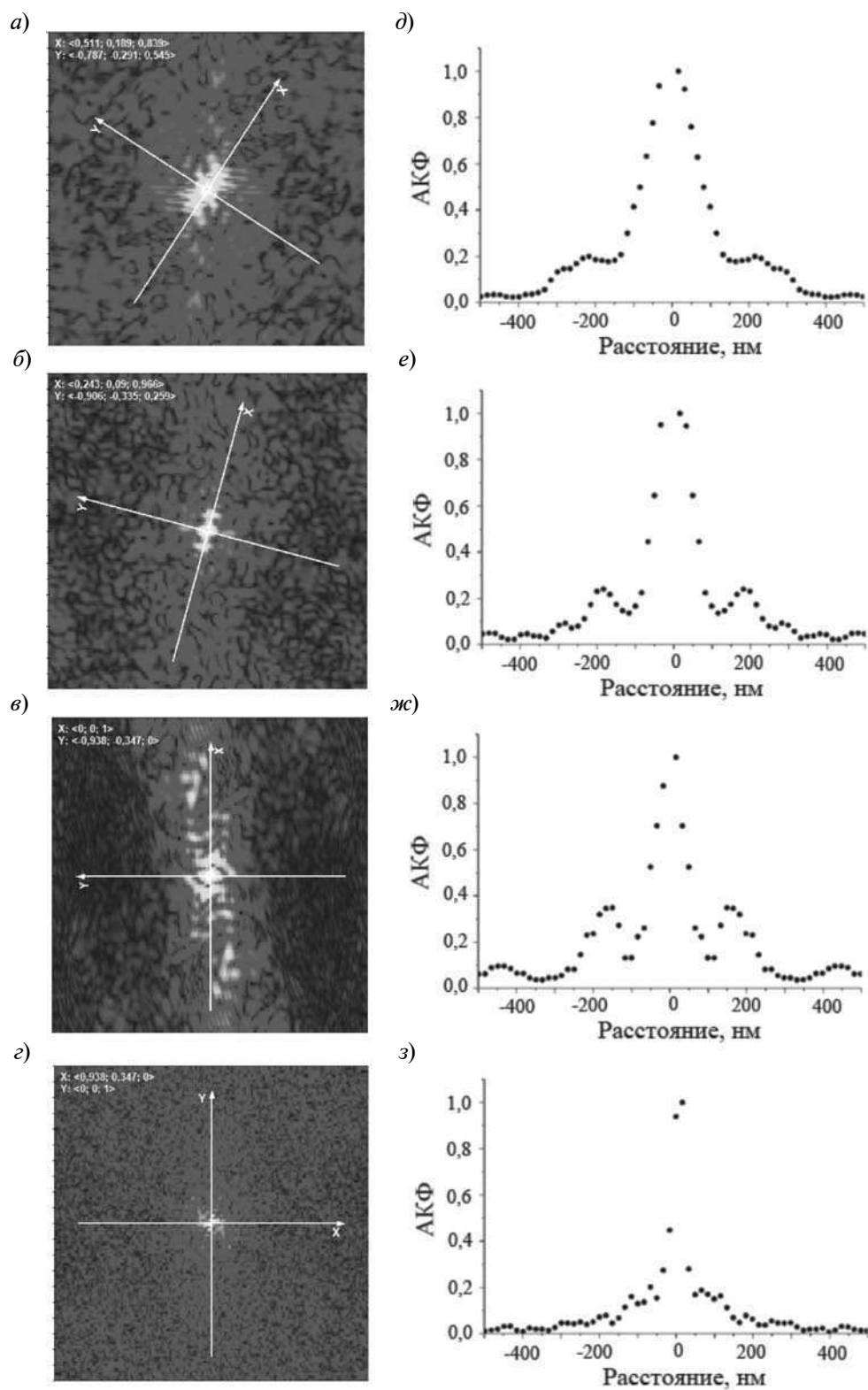


Рис. 7. Графическое представление вещественных автокорреляционных функций (а–г) образца PMNPT10 при различных температурах T и их срезы вдоль указанных направлений X (д–з) для случаев брэгговского (д, е) и диффузного (ж, з) рассеяния.
 $T = 370$ К (а, д), 300 К (б, ж), 230 К (в, з), 200 К (г, е)

ставляющая остается неизвестной. По этой причине невозможно полностью восстановить вид функции комплексного пропускания, однако можно частично восстановить ее частотный спектр.

На рис. 6 представлены результаты моделирования рассеяния на простейшей двумерной кристаллической решетке 200×200 двухатомных ячеек. На рис. 6, а представлено распределение поляризации. Вне полярных областей поляризация имеет нормальное распределение (шум), а внутри них она направлена перпендикулярно оси эллипса нанорегиона с нормально распределенными величинами ее отклонения от среднего значения и угла поляризации. Моделирование демонстрирует хорошее совпадение автокорреляционных функций, рассчитанных непосредственно из известной кристаллической решетки и через Фурье-преобразование картины рассеяния (рис. 6, в, г).

Нами были определены вещественные АКФ образца PMNPT10 для всех исследуе-

мых температур в брэгговской и диффузной конфигурациях (рис. 7).

Расстояния между экстремумами пространственной автокорреляционной функции связаны с характерными расстояниями в доменной структуре образца, однако определить какие-либо количественные характеристики этой структуры по виду корреляционной функции крайне затруднительно ввиду сложного характера ее поведения. В связи с этим проще рассматривать одномерные срезы автокорреляционной функции вдоль некоторых выбранных направлений.

Итак, в результате проведенных исследований было получено однозначное подтверждение существования полярных нанобластей выше температуры фазового перехода и упорядоченной нанодоменной структуры ниже этой температуры.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации (программа «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2013 гг.).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Филимонов, А.В.** Ужесточение мягкой моды в эпитаксиальных тонких пленках сегнетоэлектриков релаксоров [Текст] / А.В. Филимонов, Р.Г. Бурковский, Ю.А. Бронвальд [и др.] // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки, 2012. — № 2. — С. 41–49.
2. **Александров, С.Е.** Сегнетоэлектрики-релаксоры как материалы для ИК фотоприемников [Текст] / С.Е. Александров, Г.А. Гаврилов // ЖТФ. — 2004. — № 74. — С. 72–76.
3. **Vakhrushev, S.** Synchrotron X-ray scattering study of lead magnoniobate relaxor ferroelectric crystals [Text] / S. Vakhrushev, A. Naberezhnov, S. Sinha // Phys. Chem. Solids. — 1996. — Vol. 57. — № 10. — P. 1517–1523.
4. **Egami, T.** Local atomic structure of relaxor ferroelectric solids determined by pulsed neutron

- and X-ray scattering [Text] / T. Egami, S. Teslic, W. Dmowski, D. Viehland, S. Vakhrushev / Ferroelectrics. — 1997. — Vol. 199. — P. 103–113.
5. **Shvartsman, V.** Domain structure of $0.8\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{--}0.2\text{PbTiO}_3$ studied by piezoresponse force microscopy [Text] / V. Shvartsman, A. Kholkin, S. Vakhrushev, A. Naberezhnov / Phys. Rev. — 2004. — Vol. 69. — P. 014102 (5 p.).
6. **Шаганов, А.П.** Формирование полярных нанобластей и нанодоменов в одноосных релаксорах SBN-61 / А.П. Шаганов, А.В. Филимонов, Е.Ю. Королева, А.Э. Фотиади // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2012. — № 3. — С. 15–21.
7. **Tai, R.Z.** Picosecond view of microscopic-scale polarization clusters in paraelectric BaTiO_3 [Text] / R.Z. Tai, K. Namikawa, A. Sawada [et al.] // Phys. Rev. Lett. — 2004. — Vol. 93. — P. 087601 (4 p.).

REFERENCES

1. **Filimonov A.V., Burkovskii R.G., Bronwald Yu.A., Vakhrushev S.B., Shaganov A.P., Fotiadi A.E.** Tightening of the soft mode in epitaxial thin films of relaxor ferroelectric materials. St.-Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics, 2012. — № 2 (146). — S. 41–49. (rus)
2. **Aleksandrov S.E., Gavrilov G.A.** Segnetoelek-

- triki-relaksory kak materialy dlia IK fotopriemnikov. Technical Physics, 2004. — № 74. — S. 72–76. (rus)
3. **Vakhrushev S., Naberezhnov A., Sinha S.** Synchrotron X-ray scattering study of lead magnoniobate relaxor ferroelectric crystals. Phys. Chem. Solids, 1996. — Vol. 57. — № 10. — P. 1517–1523.



4. Egami T., Teslic S., Dmowski W., Viehland D., Vakhrushev S. Local atomic structure of relaxor ferroelectric solids determined by pulsed neutron and X-ray scattering. *Ferroelectrics*, 1997. — Vol. 199. — P. 103–113.
5. Shvartsman V., Kholkin A., Vakhrushev S., Naberezhnov A. Domain structure of $0.8\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}0.2\text{PbTiO}_3$ studied by piezoresponse force microscopy. *Phys. Rev.*, 2004. — Vol. 69. — P. 014102 (5 p.).
6. Shaganov A.P., Filimonov A.V., Koroleva E.Yu., Fotiadi A.E. The formation of polar nano-regions and nanodomains in SBN-61 single-axis relaxors. *St.-Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2012. — № 3 (153). — S. 15–21. (rus)
7. Tai R.Z., Namikawa K., Sawada A. et al. Picosecond view of microscopic-scale polarization clusters in paraelectric BaTiO_3 . *Phys. Rev. Lett.*, 2004. — Vol. 93. — P. 087601 (4 p.).

ШАГАНОВ Антон Павлович — ассистент кафедры физической электроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
shaganovanton@gmail.com

ВАХРУШЕВ Сергей Борисович — доктор физико-математических наук, заведующий лабораторией нейтронных исследований Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

194021, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26
s.vakhrushev@mail.ioffe.ru

ФИЛИМОНОВ Алексей Владимирович — доктор физико-математических наук, доцент кафедры физической электроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
filimonov@rphf.spbstu.ru

ОВАДА Кенжи (OHWADA Kenji) — Ph.D, научный сотрудник (inventor) отдела физики конденсированного состояния Японского агентства по атомной энергии (JAEA)/SPRING-8.

1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun Hyogo 679-5198 Japan
ohwada@spring8.or.jp

УДК 538.945

О.С. Комарова, О.А. Мартынова, В.Э. Гасумянц

ВЛИЯНИЕ ЛЕГИРОВАНИЯ ЦЕРИЕМ НА ПАРАМЕТРЫ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО СПЕКТРА В СИСТЕМЕ $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$

O.S. Komarova, O.A. Martynova, V.E. Gasumyants

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya Str., St. Petersburg, Russia.

CERIUM DOPING INFLUENCE ON THE ENERGY SPECTRUM PARAMETERS IN THE $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ SYSTEM

В работе проведен анализ температурных и концентрационных зависимостей коэффициента термоэдс для системы $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ ($x = 0,025 - 0,250$) на основе трех различных моделей электронного транспорта: двухзонной Ксина; двухзонной с дополнительным слагаемым, линейным по температуре; а также узкой зоны. Показано, что наилучшее согласие экспериментальных и расчетных данных может быть достигнуто в рамках модели узкой зоны. Определены значения модельных параметров в исследованных образцах и проанализирован характер их изменения с ростом содержания церия. В итоге исследования подтверждена правомерность предположения о формировании в энергетическом спектре Nd_2CuO_y при легировании церием новой узкой проводящей зоны внутри мотт-халлбардовской щели.

ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫЕ СВЕРХПРОВОДНИКИ, ЭЛЕКТРОННЫЕ ЯВЛЕНИЯ ПЕРЕНОСА, ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ СПЕКТР, ЛЕГИРОВАНИЕ.

The temperature and concentration dependences of the thermopower in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ ($x = 0.025 - 0.250$) system have been analyzed using three models of the electron transport, i.e. Xian's two-band model, two band model with a linear T -term and narrow-band model. It is shown, that the best agreement of the experimental and calculated results can be achieved in the framework of the narrow-band model. The model parameters in studied samples were determined and a character of their variation with increasing cerium content was analyzed. This allows us to confirm the validity of the supposition that a new narrow conduction band is formed in the Nd_2CuO_y energy spectrum under cerium doping.

HIGH-TEMPERATURE SUPERCONDUCTORS, ELECTRON TRANSPORT PHENOMENA, ENERGY SPECTRUM, DOPING.

В литературе имеется большое число работ, посвященных попыткам как теоретического, так и экспериментального определения основных особенностей строения энергетического спектра высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) различных систем. Одним из стандартных и часто используемых методов изучения энергетической структуры различных материалов является экспериментальное исследование с последующим количественным анализом электронных явлений переноса. Для описания температурных зависимостей

кинетических коэффициентов в ВТСП-материалах в нормальном состоянии предлагались принципиально различные подходы, и выбор модели, наиболее адекватно описывающей эти зависимости, является одним из актуальных вопросов физики ВТСП-соединений. С другой стороны, при наличии в различных моделях аналогичных по физическому смыслу параметров, в случае выявления совпадения характера их изменения под действием легирования степень достоверности данных о модификации параметров нормального состояния,



полученных на основании количественного анализа экспериментальных данных, существенно возрастает.

В данной работе мы подробно рассмотрим и сравним результаты, полученные на основании анализа температурных зависимостей коэффициента термоэдс $S(T)$ в ВТСП неодимовой системы в рамках трех моделей, наиболее часто используемых в литературе для описания поведения этого кинетического коэффициента [1–3]. Такой подход мы ранее применили для ВТСП иттриевой и висмутовой систем, и он позволил выявить основные особенности модификации параметров энергетического спектра и системы носителей заряда при легировании [4, 5].

Как известно, система $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ характеризуется, в отличие от большинства других ВТСП, электронным типом проводимости, что может быть вызвано наличием особенностей в формировании и параметрах энергетического спектра данного соединения. В частности, диапазон изменения значений коэффициента термоэдс в этой системе очень широкий. Так, при минимальном содержании x значение данного коэффициента при комнатной температуре (S_{300}) достигает $-(360 - 390)$ мкВ/К, а с ростом x оно последовательно и достаточно сильно (особенно в диапазоне до $x \approx 0,1$) увеличивается и при $x > 0,15$ становится близким к нулю [6]. Указанная особенность позволяет провести детальный анализ изменений в структуре и параметрах энергетического спектра, происходящих при введении церия. Приведенные доводы и обусловили выбор системы $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ для нашего исследования.

Модели, используемые для анализа экспериментальных данных

Как уже отмечалось, в литературе были предложены различные модели электронного транспорта в ВТСП-материалах. Мы выделили три из них. Они не только наиболее часто используются для анализа экспериментальных данных, но и содержат ряд сходных по физическому смыслу параметров.

Первая из выбранных нами моделей – двузонная модель Ксина [1]. Она была предложена и успешно применялась для описания экспериментальных данных, полученных для различных серий образцов бесцепочечных ВТСП (висмутовая и таллиевая системы). В рамках этой модели предполагается, что в энергетическом спектре вблизи уровня Ферми E_F существуют две зоны, одна из которых вносит вклад в дырочную проводимость металлического типа, а вторая обеспечивает электронную проводимость полупроводникового типа. В рамках этой модели коэффициент термоэдс описывается выражением

$$S = AT + (B\lambda + CT)\exp(-\lambda/T),$$

где A , B , C , λ – подгоночные параметры модели.

При этом ясным физическим смыслом обладают только два из них: A и λ . Первый определяет вклад в проводимость подвижных носителей заряда, т. е. его значение зависит от их концентрации (чем больше данный параметр, тем меньше концентрация дырок или, соответственно, больше концентрация электронов), а второй – $\lambda = E_g/2k_B$ – ширину «полупроводниковой» запрещенной зоны E_g (k_B – постоянная Больцмана).

Вторая из выбранных нами – это двузонная модель с дополнительным слагаемым, линейным по температуре [2]. Она применялась для анализа экспериментальных данных, полученных для ВТСП висмутовой системы. Ее основным постулатом является наличие вблизи уровня Ферми узкого «резонансного» пика плотности состояний на фоне широкой зоны. При этом предполагается, что состояния на краях этого пика локализованы. Коэффициент термоэдс описывается следующим выражением:

$$S = \frac{AT}{B^2 + T^2} + \alpha T,$$

где

$$A = 2 \frac{(E_F - E_0)}{|e|}; \quad B = 3 \frac{(E_F - E_0)^2 + \Gamma^2}{\pi^2 k_B^2};$$

e – заряд электрона; E_0 и Γ – центр и полуширина пика плотности состояний, со-

ответственно; величина $(E_F - E_0)$ определяет положение уровня Ферми относительно середины этого пика и, соответственно, число носителей заряда; линейный член αT описывает вклад в коэффициент термоэдс носителей заряда, находящихся в стандартной металлической зоне.

Наконец, на основе предположения о наличии в энергетическом спектре ВТСП-материалов узкой проводящей зоны или узкого пика плотности состояний была разработана феноменологическая модель узкой зоны [3]. Данная модель неоднократно успешно применялась для описания температурных зависимостей коэффициентов термоэдс, Холла и Нернста — Эттингсгаузена в ВТСП различных систем [3, 7]. В рамках этой модели используется аппроксимация функций плотности состояний $D(E)$, дифференциальной проводимости $\sigma(E)$ прямоугольниками различной ширины, что позволяет получить для коэффициента термоэдс следующее выражение [3]:

$$S = -\frac{k_B}{e} \left\{ \frac{W_\sigma^*}{\text{sh } W_\sigma^*} \left[\exp(-\mu^*) + \text{ch } W_\sigma^* - \frac{1}{W_\sigma^*} (\text{ch } \mu^* + \text{ch } W_\sigma^*) \times \right. \right. \\ \left. \left. \times \ln \frac{\exp(\mu^*) + \exp(W_\sigma^*)}{\exp(\mu^*) + \exp(-W_\sigma^*)} \right] - \mu^* \right\},$$

где

$$W_D^* = \frac{W_D}{2k_B T}; \quad W_\sigma^* = \frac{W_\sigma}{2k_B T};$$

$$\mu^* = \frac{\mu}{k_B T} = \ln \frac{\text{sh}(FW_D^*)}{\text{sh}[(1-F)W_D^*]} - b \frac{W_D}{k_B T};$$

μ — уровень электрохимического потенциала; W_D — полная эффективная ширина зоны; W_σ — эффективная ширина зоны «по проводимости»; F — степень заполнения зоны электронами, равная отношению числа электронов к числу состояний в зоне; b — степень асимметрии зоны, характеризующая несовпадение по энергии центров прямоугольников, аппроксимирующих функции $D(E)$ и $\sigma(E)$.

Отметим, что изменение при легировании параметра C , равного отношению W_σ/W_D , в рамках данной модели характе-

ризует изменение степени локализации зонных состояний (чем меньше значение параметра C , тем большая часть состояний является локализованной).

Кроме того, в рамках данной модели может быть определено положение уровня Ферми: в случае симметричной зоны значение E_F относительно ее середины может быть вычислено по формуле:

$$E_F = [F - 1/2] W_D,$$

а при наличии ее асимметрии — по формуле [3]:

$$E_F = [F - 1/2] W_D - b W_D.$$

Таким образом, выбранные модели основаны на различных базовых предположениях о строении энергетического спектра ВТСП-материалов, но в то же время содержат ряд параметров, имеющих сходный физический смысл. Данное обстоятельство позволяет на основе сравнительного анализа изменения значений этих параметров получить более надежную информацию об особенностях модификации свойств нормального состояния в зависимости от уровня легирования. Это и определило выбор перечисленных моделей для проведения наших исследований.

Исходные данные для анализа

При проведении анализа нами были использованы данные по измерению температурных зависимостей коэффициента термоэдс, полученные ранее в нашей лаборатории для серии керамических образцов состава $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ с концентрацией церия $x = 0,1 - 0,2$ при различных уровнях содержания кислорода [6]. С целью получения более полной и надежной информации дополнительно были также использованы экспериментальные результаты, полученные другими авторами для ВТСП неодимовой системы [8–10].

Рассмотрим температурные зависимости коэффициента термоэдс в системе $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ в диапазоне $T = T_c - 300$ К. На рис. 1 для примера представлены некоторые из этих зависимостей по данным [6, 8–10]. Отметим их характерные особенности. При низком уровне легирования

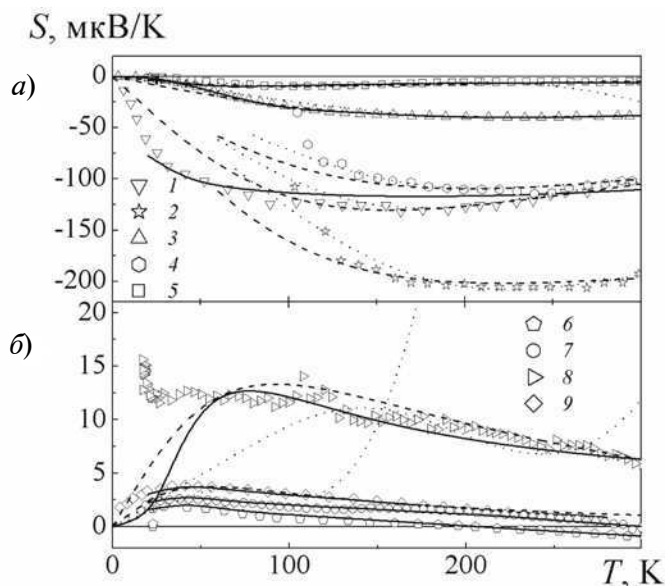


Рис. 1. Экспериментальные (символы) и расчетные (линии) температурные зависимости коэффициента термоэдс в системе $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ в диапазонах $x \leq 0,145$ (а) и $x \geq 0,150$ (б). Значения x : 0,025 [8] (кривая 1); 0,030 [9] (2); 0,060 [10] (3); 0,075 [9] (4); 0,135 [6] (5); 0,150 [8] (6); 0,170 [6] (7); 0,185 [6] (8); 0,220 [8] (9).

Расчеты проведены по моделям, опубликованным в работах [1] (пунктиры); [2] (штриховые линии); [3] (сплошные линии)

(когда абсолютные значения коэффициента термоэдс велики) характер кривых $S(T)$ типичен для большинства ВТСП-материалов. При высоких температурах абсолютное значение коэффициента термоэдс плавно возрастает при понижении температуры, затем демонстрирует широкий максимум, после которого падает до нуля при температуре вблизи сверхпроводящего перехода. С увеличением содержания церия абсолютные значения коэффициента термоэдс уменьшаются, а максимум на кривых $S(T)$ смещается в область более низких температур. При концентрации церия $x \approx 0,14$ наблюдается переход зависимостей $S(T)$ через нуль, а сами они становятся аналогичными по виду кривым $S(T)$ для других бесцепочечных ВТСП-систем, т. е. значение коэффициента термоэдс практически линейно возрастает с уменьшением температуры.

Анализ экспериментальных данных

Сравнение с экспериментом кривых $S(T)$, рассчитанных по различным моделям для образцов $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$, представлено на рис. 1. Отметим, что в модели [1] от-

рицательные значения коэффициента термоэдс можно получить, только если учесть, что проводимость обеих зон, наличие которых предполагается в рамках данной модели, имеет электронный тип.

Полученные нами результаты показывают, что модель Ксина способна хорошо описать экспериментальные зависимости $S(T)$ только при больших абсолютных значениях S , т. е. при концентрации церия $x \leq 0,075$; в то время как при больших концентрациях она дает заметное расхождение с экспериментом. Согласно проведенным расчетам, для $x > 0,100$ удается достичь согласия экспериментальных и расчетных кривых в области максимумов на зависимостях $S(T)$, но при $T \approx 170 - 200$ К на расчетной кривой наблюдается минимум, а затем значения S резко возрастают.

Модель [2] дает хорошее согласие экспериментальных и расчетных кривых при содержаниях церия в пределах $x \leq 0,135$ и $0,165 \leq x \leq 0,220$, тогда как для образцов с минимальными значениями S ($x \approx 0,145 - 0,155$) достичь удовлетворительного согласия эксперимента и расчета вообще не удается.

Значения параметров моделей [1] – [3], полученных из экспериментальных данных разных авторов [6, 8, 9, 10] для образцов $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$

Двухзонная модель Ксина [1]						
x	A , мкВ/К	B , мкВ/К ²	C , мкВ/К ²	λ , К	E_g , эВ	Источник данных
0,100	−0,236	3,12	−6,00	826	0,142	[6] (наши данные)
0,125	−0,184	0,96	−0,82	586	0,101	
0,135	−0,161	1,08	−1,16	573	0,099	
0,145	−0,048	1,67	−3,94	613	0,106	
0,185	0,037	−1,91	−4,49	840	0,145	
0,200	0,061	−1,92	5,80	533	0,092	
0,010	−1,342	5,22	−4,15	667	0,115	[8]
0,025	−1,034	3,48	−1,67	626	0,108	
0,150	0,015	−1,50	6,00	1293	0,223	
0,220	0,065	−1,97	5,70	440	0,076	
0,030	−1,291	−5,10	−3,63	840	0,145	[9]
0,050	−1,036	2,88	−1,07	640	0,110	
0,075	−0,722	3,60	−3,80	827	0,143	
0,060	−0,234	2,64	−5,56	1093	0,189	[10]
0,120	−0,098	1,98	−4,09	1320	0,228	
0,140	−0,055	0,84	−1,72	639	0,110	
Двухзонная модель с дополнительным слагаемым, линейным по температуре [2]						
x	A , мкВ	B , К	α , мкВ/К ²	$E_F - E_0$, мэВ	Γ , мэВ	Источник данных
0,100	−7653	132	0,01	−3,83	20,3	[6] (наши данные)
0,125	−4860	124	0,01	−2,43	19,2	
0,135	−3750	113	0,01	−1,88	17,6	
0,165	690	135	−0,011	0,35	21,1	
0,185	2670	96	−0,007	1,34	15,0	
0,200	1770	118	−0,013	0,89	18,4	
0,010	−49620	160	−0,106	−24,8	3,2	[8]
0,025	−44400	164	0,029	−22,2	12,8	
0,150	1260	188	−0,009	0,6	29,4	
0,220	420	55	−0,002	0,2	8,6	
0,030	−108120	382	−0,271	−54,1	25,4	[9]
0,050	−61440	208	−0,004	−30,7	10,7	
0,075	−49260	220	0,037	−24,6	24,0	
0,060	−18900	232	0,004	−9,5	35,0	[10]
0,120	−22420	336	0,075	−11,2	51,3	
0,140	−1200	112	0,004	−0,6	17,5	
0,170	120	80	0,001	0,1	12,5	
0,200	120	40	0,002	0,1	6,3	
Модель узкой зоны [3]						
x	F	W_D , мэВ	C	b	E_F , мэВ	Источник данных
0,100	0,4752	220	0,177	0,001	−5,68	[6] (наши данные)
0,125	0,4796	201	0,166	−0,004	−3,30	
0,135	0,4818	137	0,209	−0,001	−2,36	
0,155	0,4951	111	0,206	−0,001	−0,43	
0,165	0,4968	50	0,202	−0,002	−0,06	
0,185	0,5062	79	0,319	−0,015	1,67	
0,200	0,5040	55	0,321	−0,004	0,44	



Окончание таблицы

0,010	0,3450	430	0,306	0,027	-78,21	[8]
0,025	0,3920	335	0,234	0,014	-41,00	
0,150	0,4839	125	0,186	-0,020	0,46	
0,220	0,4961	70	0,286	-0,010	0,39	
0,030	0,3539	415	0,290	0,032	-73,91	[9]
0,050	0,3743	345	0,189	0,007	-45,78	
0,075	0,3959	306	0,490	-0,001	-31,55	
0,060	0,4478	305	0,255	0,000	-15,92	[10]
0,120	0,4680	203	0,345	-0,002	-6,17	
0,140	0,4999	115	0,248	0,006	-0,75	
0,170	0,5061	80	0,150	0,005	0,08	
0,200	0,5037	50	0,270	0,002	0,11	

Модель [3] дает очень хорошее совпадение расчетных и экспериментальных кривых в широком диапазоне концентраций церия ($x \geq 0,06$). Для образцов с минимальными уровнем легирования ($x < 0,06$) и, соответственно, большими абсолютными значениями коэффициента термоэдс, расхождение расчетных и экспериментальных кривых достаточно заметно.

Полученные значения модельных параметров для трех рассматриваемых моделей представлены в таблице. В модели [1] с увеличением содержания церия параметр A , определяющий концентрацию электронов, возрастает; в области концентраций $x \leq 0,15$ он имеет отрицательные значения, а затем меняет знак, оставаясь при этом близким к нулю. Ширина запрещенной зоны изменяется слабо в диапазоне $E_g \approx 0,076 - 0,200$ эВ. Необходимо отметить, что параметры B и C с ростом содержания примесей изменяются немонотонно, а погрешность в определении значений модельных параметров при $x \geq 0,075$ велика.

В модели [2] при отрицательных значениях коэффициента термоэдс уровень Ферми имеет отрицательные значения. При малых концентрациях церия ($x = 0,01 - 0,03$) значения $(E_F - E_0)$ составляют приблизительно $-(50 - 25)$ мэВ. С ростом содержания церия эта величина увеличивается и при $x \approx 0,15$ становится близкой к нулю, т. е. уровень Ферми сдвигается к середине зоны. Дальнейший рост содержания церия приводит к очень слабому изменению значений $(E_F - E_0)$. Значения ширины резонансного пика лежат в диапа-

зоне $\Gamma \approx 10 - 30$ мэВ, но четко выраженная тенденция в изменении этого параметра с ростом содержания церия в системе $Nd_{2-x}Ce_xCuO_y$ отсутствует. Отметим также, что значение параметра α с ростом содержания примесей изменяется немонотонно.

В модели [3] с ростом концентрации церия в диапазоне $x = 0,01 - 0,15$ ширина проводящей зоны резко уменьшается, степень заполнения зоны электронами и значение E_F сильно возрастают (уровень Ферми приближается к середине зоны). Дальнейшее увеличение содержания церия оказывает на параметры W_D , F и E_F очень слабое влияние. Что касается степени локализации, то в целом значения параметра C лежат в пределах $C = 0,15 - 0,35$, однако тенденция в его изменении с ростом содержания церия, как и в случае модели [2], отсутствует. Значения параметра асимметрии b очень низкие по сравнению со случаем висмутовых ВТСП [5].

Сравнительный анализ результатов, полученных в рамках различных моделей

Как уже отмечалось, использованные для анализа модели содержат ряд параметров, имеющих аналогичный физический смысл. Во-первых, во всех трех моделях есть параметр, значение которого характеризует количество электронов в зоне (другими словами, положение уровня Ферми) — это параметры A в модели [1], $(E_F - E_0)$ в модели [2] и E_F в модели [3]. Для системы $Nd_{2-x}Ce_xCuO_y$ изменение этих величин с увеличением содержания церия качествен-

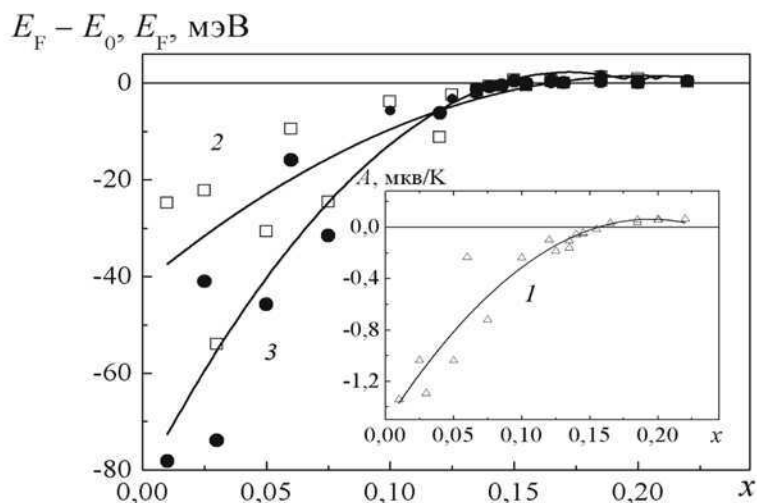


Рис. 2. Зависимости значений модельных параметров, характеризующих концентрацию носителей заряда, от содержания примесей в системе $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$. Значения рассчитаны по моделям [1] (1), [2] (2) и [3] (3)

но аналогично: во всех трех случаях значения указанных параметров возрастают с ростом содержания церия (рис. 2). В области концентраций $x \leq 0,15$ они имеют отрицательные значения, затем (при $x \approx 0,15$) становятся близкими к нулю; а дальнейший рост содержания церия приводит к их очень слабому изменению. Более того, значения уровня Ферми, определенные в рамках моделей узкой зоны и двузонной модели с дополнительным линейным слагаемым, достаточно хорошо совпадают и количественно, хотя модель узкой зоны дает несколько более сильные их изменения с ростом содержания примесей.

Во-вторых, двузонная модель с дополнительным линейным слагаемым и модель узкой зоны содержат еще два параметра со сходным физическим смыслом: Γ и $C = W_\sigma/W_D$. Напомним, что в первой из них величина Γ определяет ширину интервала делокализованных состояний, при этом полная ширина зоны остается неизменной. Во второй модели одновременно изменяются и полная эффективная ширина зоны W_D , и эффективная ширина зоны «по проводимости» W_σ , при этом изменение степени локализации состояний при легировании определяется изменением их отношения, а долю делокализованных состояний характеризует параметр $C = W_\sigma/W_D$.

Поэтому необходимо сравнивать значения параметров Γ и C . Как видно из таблицы, однозначно определить характер концентрационных зависимостей этих параметров не удастся, однако диапазон их изменений ($\Gamma = 10 - 30$ мэВ и $C = 0,15 - 0,35$) является типичным для ВТСП различных систем [4, 5].

Возможные физические причины выявленной модификации параметров нормального состояния в системе $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ подробно описаны в работе [6]. Полученные нами результаты при анализе зависимостей $S(T)$ в рамках различных моделей подтверждают, что все данные как по особенностям поведения коэффициента термоэдс, так и по изменению значений модельных параметров энергетического спектра могут быть объяснены на основе предположения о возникновении в системе $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ при легировании новой узкой проводящей зоны. В основу этого предположения положена идея о формировании некоторого аналога «примесной зоны» внутри мотт-хаббардовской щели (так называемая мидгап-модель (midgap) [11]), привлекавшая разными авторами как экспериментальных, так и теоретических работ при обсуждении генезиса энергетического спектра в ВТСП-материалах (рис. 3).

При низких концентрациях церия

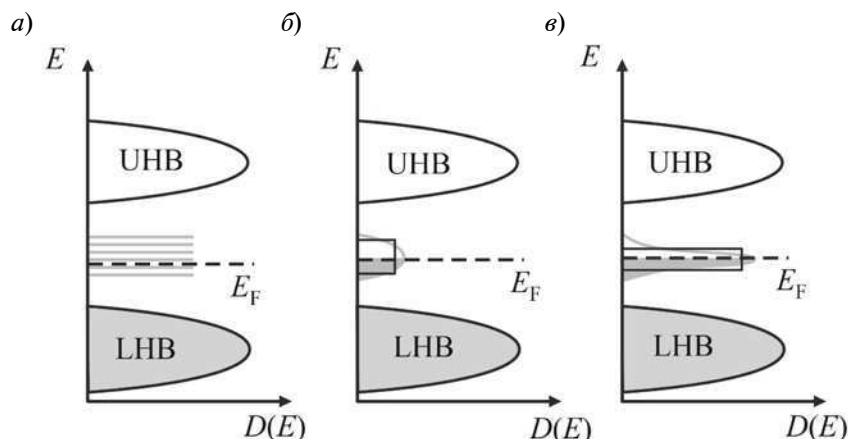


Рис. 3. Схема трансформации энергетического спектра под действием легирования в системе $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ [7]: а — $x = 0 - 0,06$ (слабое легирование); б — $0,06 < x < 0,15$ (промежуточное); в — $x = 0,15 - 0,20$ (сильное). UHB, LHB — верхняя и нижняя хаббардовские подзоны, причем заполненные электронами состояния затухены серым тоном; прямоугольники — модельная аппроксимация функции плотности состояний для центральной узкой зоны в рамках модели [3]

($x \leq 0,025$) внутри мотт-хаббардовской щели появляются только отдельные (не перекрывающиеся между собой) мидгап-уровни (см. рис. 3, а). Можно предположить, что в этом диапазоне легирования проводимость имеет прыжковый характер. При этом количество электронов, располагающихся на мидгап-уровнях, мало, и уровень Ферми имеет большие отрицательные значения или, что то же самое, концентрация электронов очень мала ($E_F = -(60 - 70)$ мэВ и $(E_F - E_0) = -(40 - 50)$ мэВ по моделям [2, 3], $A = -(1,2 - 1,3)$ по модели [1]). Отметим, что «полупроводниковая» модель проводимости оказывается неправомерной, поскольку изменение значений ширины запрещенной зоны, рассчитанной в рамках модели [1], во всем исследованном диапазоне легирования не демонстрирует наличия какой-либо четкой тенденции (см. таблицу).

С ростом x мидгап-уровни постепенно перекрываются, образуя тем самым мидгап-зону ($x \geq 0,06$), и проводимость приобретает обычный зонный характер (см. рис. 3, б). Вот почему, начиная именно с указанных значений x , модель [3] дает хорошее совпадение расчетных и экспериментальных зависимостей $S(T)$. При этом состояния на краях зоны могут быть локализованы

вследствие присущей образцам неодимовой системы неоднородности в распределении атомов церия [12]. При низком уровне легирования уровень Ферми расположен в нижней части зоны, где состояния все еще локализованы; это приводит к большим отрицательным значениям коэффициента термоэдс. Увеличение содержания церия (до $x \leq 0,15$) приводит к последовательному смещению уровня Ферми вверх к середине зоны, т. е. в делокализованную часть мидгап-зоны. В результате при $x \approx 0,15$ ($E_F - E_0$) и $E_F \approx 0$, а значения S минимальны. При дальнейшем увеличении уровня легирования, т. е. в диапазоне $x \approx 0,15 - 0,22$, уровень Ферми пиннируется в середине мидгап-зоны (см. рис. 3, в).

Таким образом, в работе были проанализированы экспериментальные зависимости коэффициента термоэдс для системы $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ в рамках трех различных моделей электронного транспорта: двузонной модели Ксина, двузонной модели с дополнительным слагаемым, линейным по температуре, и модели узкой зоны. На основе проведенного сравнительного анализа полученных результатов можно сделать следующие выводы.

1. Двузонная модель Ксина хорошо

описывает зависимости $S(T)$ в системе $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ только до концентраций церия $x = 0,075$; при больших концентрациях наблюдается заметное расхождение расчетных данных с экспериментом в области температур $T = 170 - 300$ К. Двухзонная модель с дополнительным линейным по температуре слагаемым достаточно хорошо описывает зависимости $S(T)$ в диапазонах легирования $x \leq 0,135$ и $0,165 \leq x \leq 0,220$, когда абсолютные значения S достаточно велики. Для образцов с минимальными значениями S ($x \approx 0,145 - 0,155$) достичь удовлетворительного согласия эксперимента и расчета вообще не удастся. Модель узкой зоны хорошо описывает экспериментальные температурные зависимости коэффициента термоэдс для $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$, начиная с $x = 0,060$. Для образцов с минимальным содержанием церия расхождение расчетных и экспериментальных кривых достаточно заметно.

2. Несмотря на существенные различия, рассмотренные модели электронного транспорта содержат ряд параметров, имеющих сходный физический смысл. На основе проведенного анализа выявлены качественно, а в ряде случаев и количественно, одинаковые изменения этих параметров с ростом содержания церия, что позволи-

ло получить надежные данные о характере модификации энергетического спектра $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ под действием легирования.

3. Тенденции в изменении параметров энергетического спектра и системы носителей заряда под действием легирования церием в системе $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ существенно различаются в случаях $x \leq 0,15$ и $x \geq 0,15$ диапазонов легирования. Уровень Ферми резко возрастает при низких концентрациях церия и изменяется незначительно вблизи середины зоны при $x \geq 0,15$; ширина проводящей зоны уменьшается с ростом содержания церия (до $x \approx 0,15$), а затем практически не изменяется.

4. Экспериментальные данные по трансформации зависимостей $S(T)$ с ростом уровня легирования в системе $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$, а также результаты их анализа в рамках различных моделей электронного транспорта могут быть объяснены на основе предположения о формировании в энергетическом спектре данного соединения при легировании новой узкой проводящей зоны внутри мотт-халлардовской щели.

Работа выполнена в рамках гранта Президента Российской Федерации для молодых ученых (МК-4608.2012.2).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Xin, Y.** Thermoelectric power of the thallium-based superconductor $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10-\delta}$ [Текст] / Y. Xin, K.W. Wong, C.X. Fan [et al.] // Phys. Rev. B. — 1993. — Vol. 48. — № 1. — P. 557–561.
2. **Forro, L.** Thermoelectric power of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ single crystals with varying oxygen stoichiometry [Текст] / L. Forro, J. Lukatela, B. Keszei // Solid State Commun. — 1990. — Vol. 73. — № 7. — P. 501–505.
3. **Gasumyants, V.E.** The electron transport phenomena in Y-based HTSC's and their analysis on the basis of phenomenological narrow-band theory. The band structure transformation with oxygen content and substitution for Cu [Текст] / V.E. Gasumyants, V.I. Kaidanov, E.V. Vladimirskaia // Physica C. — 1995. — Vol. 248. — № 3-4. — P. 255–275.
4. **Комарова, О.С.** Определение параметров нормального состояния в легированных иттриевых ВТСП на основе анализа коэффициента термоэдс в рамках различных моделей электронного транспорта [Текст] / О.С. Комарова, В.Э. Гасумянц // ФТТ. — 2010. — Т. 52. — Вып. 4. — С. 625–632.
5. **Комарова, О.С.** Модификация параметров энергетического спектра под действием легирования в системе $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ [Текст] / О.С. Комарова, О.А. Мартынова, П.В. Шорохов, В.Э. Гасумянц // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2011. — № 2 (122). — С. 34–41.
6. **Мартынова, О.А.** Механизм формирования и модификации энергетического спектра в системе $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ под действием легирования церием [Текст] / О.А. Мартынова, В.Э. Гасумянц // ФТТ. — 2013. — Т. 55. — Вып. 2. — С. 219–226.
7. **Комарова, О.С.** Модификация кинетических коэффициентов под действием легирования кальцием в системе $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ba}_{1.5}\text{La}_{0.5}\text{Cu}_3\text{O}_y$ [Текст] / О.С. Комарова, О.А. Мартынова,



Н.В. Агеев, В.Э. Гасумянц // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2009. — № 1 (73). — С. 71–76.

8. **Hagen, S.J.** In-plane transport properties of $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ [Text] / S.J. Hagen, X. Xu, J.L. Peng [et al.] // Physica C. — 1991. — Vol. 185–189. — P. 1275–1276.

9. **Mori, N.** Thermoelectric power and resistivity in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ system [Текст] / N. Mori, T. Kameyama, H. Enomoto [et al.] // J. Alloys and Compounds. — 2006. — Vol. 408–412. — P. 1222–1225.

10. **Wang, C.H.** Influence of doping level on the Hall coefficient and on the thermoelectric power in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ [Text] / C.H. Wang, G.Y. Wang, T. Wu [и др.] // Phys. Rev. B. — 2005. — Vol. 72. — P. 132506 (4 p.).

11. **Fisher, D.S.** Midgap states in doped Mott insulators in infinite dimensions [Text] / D.S. Fisher, G. Kotliar, G. Moeller // Phys. Rev. B. — 1995. — Vol. 52. — P. 17112–17118.

12. **Lim, K.H.** Thermopower of $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ [Text] / K.H. Lim, M.-Y. Cho // J. Korean Phys. Soc. — 1998. — Vol. 33. — P. 710–713.

REFERENCES

1. **Xin Y., Wong K.W., Fan C.X. et al.** Thermoelectric power of the thallium-based superconductor $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10-\delta}$. Phys. Rev. B. — 1993. — Vol. 48. — № 1. — P. 557–561.

2. **Forro L., Lukatela J., Keszei B.** Thermoelectric power of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ single crystals with varying oxygen stoichiometry. Solid State Commun. 1990. — Vol. 73. — № 7. — P. 501–505.

3. **Gasumyants V.E., Kaidanov V.I., Vladimirovskaya E.V.** The electron transport phenomena in Y-based HTSC's and their analysis on the basis of phenomenological narrow-band theory. The band structure transformation with oxygen content and substitution for Cu. Physica C, 1995. — Vol. 248. — № 3-4. — P. 255–275.

4. **Komarova O.S., Gasumyants V.E.** Opredele-nie parametrov normal'nogo sostojaniya v legirovannyh ittrievyyh VTSP na osnove analiza koef-ficienta termojeds v ramkah razlichnyh modelej jelektron-nogo transporta. Physics of the Solid State, 2010. —T. 52. —Vyp. 4. —S. 625–632. (rus)

5. **Komarova O.S., Martynova O.A., Shorokhov P.V., Gasumyants V.E.** Modification of the energy spectrum parameters under doping in the $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ system. St.-Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics, 2011. — № 2 (122). — S. 34–41. (rus)

6. **Martynova O.A., Gasumyants V.E.** Mekha-

nizm formirovaniia i modifikatsii energeticheskogo spektra v sisteme $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_y$ pod deistviem le-girovaniia seriem. Physics of the Solid State, 2013. —T. 55. — Vyp. 2. — S. 219–226. (rus)

7. **Komarova O.S., Martynova O.A., Ageev N.V., Gasumyants V.E.** Modification of the trans-port coefficients under calcium doping in the $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ba}_{1.5}\text{La}_{0.5}\text{Cu}_3\text{O}_y$ system. St.-Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics, 2009. —T. 1 (73). — S. 71–76. (rus)

8. **Hagen S.J., Xu X., Peng J.L. et al.** In-plane transport properties of $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$. Physica C. — 1991. — Vol. 185–189. —P. 1275–1276.

9. **Mori N., Kameyama T., Enomoto H. et al.** Thermoelectric power and resistivity in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ system. J. Alloys and Compounds, 2006. —Vol. 408–412. —P. 1222–1225.

10. **Wang C.H., Wang G.Y., Wu T. et al.** Influ-ence of doping level on the Hall coefficient and on the thermoelectric power in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$. Phys. Rev. B, 2005. — Vol. 72. —132506 p. (4 p.).

11. **Fisher D.S., Kotliar G., Moeller G.** Mid-gap states in doped Mott insulators in infi-nite dimensions. Phys. Rev. B, 1995. — Vol. 52. — P. 17112–17118.

12. **Lim K.H., Cho M.-Y.** Thermopower of $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$. J. Korean Phys. Soc, 1998. — Vol. 33. — P. 710–713.

КОМАРОВА Ольга Сергеевна — аспирантка кафедры физики полупроводников и нанoeлектроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
olik-komarik@rambler.ru

МАРТЫНОВА Ольга Александровна — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физики полупроводников и нанoeлектроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
olya218@yandex.ru

ГАСУМЯНЦ Виталий Эдуардович — доктор физико-математических наук, профессор кафедры физики полупроводников и наноэлектроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
vgas@rphf.spbstu.ru



УДК 621.315.592

А.Н. Вейс, М.К. Житинская,
Л.Н. Лукьянова, В.А. Кутасов

ОСОБЕННОСТИ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО СПЕКТРА ТЕЛЛУРИДА ВИСМУТА ПО ДАННЫМ ОПТИЧЕСКИХ ИЗМЕРЕНИЙ

A.N. Veis¹, M.K. Zhitinskaya¹,
L.N. Lukyanova², V.A. Kutasov².

¹ St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

² A.F. Ioffe Physical-Technical Institute, RAS,
26 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 194021, Russia.

PECULIARITIES OF BISMUTH TELLURIDE ENERGY SPECTRUM FROM OPTICAL MEASUREMENTS DATA

При $T = 300$ К исследованы и проанализированы спектральные зависимости коэффициентов оптического отражения и поглощения в n - и p - Bi_2Te_3 . Предложена зонная схема теллурида висмута, отвечающая экспериментальным данным.

ТЕЛЛУРИД ВИСМУТА, ОПТИЧЕСКОЕ ОТРАЖЕНИЕ И ПОГЛОЩЕНИЕ, ЗОННАЯ СХЕМА.

Spectral dependencies of optical reflection and absorption coefficients in n - and p - Bi_2Te_3 at $T = 300$ K have been investigated and analyzed. The band scheme of bismuth telluride corresponded to experimental data was put forward.

BISMUTH TELLURIDE, OPTICAL REFLECTION AND ABSORPTION, BAND SCHEME.

Твердые растворы на основе теллурида висмута с замещениями атомов в подрешетках металла и халькогена являются высокоэффективными термоэлектрическими материалами в широком интервале температур (80–550 К) и широко используются для создания термоэлектрических генераторов и охладителей. Все они, как и бинарные соединения A^5_2B^6_3 , относятся к узкощелевым слоистым полупроводникам. Их кристаллическая структура (пространственная группа D^5_{3d}) представляет собой набор сложных слоев — квинтетов, перпендикулярных оси симметрии третьего порядка c_3 . Каждый квинтет состоит из пяти слоев, занятых атомами одного сорта: либо металла (А), либо халькогена (В), которые чередуются в последовательности В — А — В — А — В. Все химические связи в соединениях A^5_2B^6_3 замкнуты внутри квинтетов, поэтому связь

между квинтетами осуществляется силами Ван-дер-Ваальса. Эта особенность кристаллического строения предопределяет сильную анизотропию большинства физических свойств соединений A^5_2B^6_3 , что затрудняет и процесс их исследования, и интерпретацию полученных при этом данных. Именно поэтому зонная структура соединений A^5_2B^6_3 до сих пор неизвестна. Даже теллурид висмута Bi_2Te_3 , наиболее изученный среди всех соединений A^5_2B^6_3 , не является в этом плане исключением. Так, лишь недавно автором работы [1], выполнившим детальный анализ имеющихся в литературе [2, 3] экспериментальных данных, было установлено, что теллурид висмута, равно как и исследованный в этой же работе твердый раствор $\text{Bi}_{0.5}\text{Sb}_{1.5}\text{Te}_3$, при комнатной температуре (300 К) является прямозонным полупроводником, а его ширина запрещенной зоны E_{gd} при $T = 300$ К

составляет 0,15 – 0,16 эВ. До сих пор обсуждается вопрос о существовании в Bi_2Te_3 дополнительных зонных экстремумов, обладающих большими эффективными массами плотности состояний. Поэтому исследования, направленные на изучение особенностей зонного спектра теллурида висмута, по-прежнему актуальны.

В настоящей работе продолжено исследование особенностей энергетического спектра Bi_2Te_3 , начатое в [1]. Анализ литературных данных, выполненный в указанной публикации, показал, что в спектрах коэффициента оптического поглощения теллурида висмута присутствует еще одна составляющая, связанная с межзонными переходами электронов с порогом E_{gi} , незначительно превышающим величину E_{gd} . При помощи графического анализа спектров дополнительного межзонного поглощения Bi_2Te_3 , выполненного в работе [1], было установлено, что наблюдаемая в них особенность, обладающая порогом E_{gi} , обусловлена непрямыми межзонными переходами электронов. Это означает, что вблизи одного из абсолютных зонных экстремумов Bi_2Te_3 существует дополнительная подзона. Однако указать, какой именно зоне она принадлежит, лишь на основании литературных данных невозможно. Экспериментальные результаты, приведенные в работах [2, 3], следует признать неполными, так как представленные в них спектры $\alpha(h\nu)$ получены в Bi_2Te_3 с низкими концентрациями свободных носителей заряда при энергиях квантов света $h\nu > E_{gd} - 0,02$ эВ. Результаты же теоретических исследований зонного спектра Bi_2Te_3 (см. например, работы [5, 6], а также цитированные в них источники) не согласуются между собой и в своем большинстве не отвечают имеющимся экспериментальным данным. В частности, они противоречат результатам, полученным методами туннельной спектроскопии [7, 8], из которых следует, что при $T = 4,2$ К ширина запрещенной зоны в теллуриде висмута равна 0,2 эВ.

Настоящая работа посвящена решению вопроса о положении дополнительной подзоны в энергетическом спектре теллурида висмута.

С этой целью в ней исследованы спектры коэффициентов оптического отражения R и поглощения α теллурида висмута в интервалах холловских концентраций дырок $p_H = (7,1 - 56) \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ и электронов $n_H = (4,7 - 126) \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Полученные нами спектры оптического отражения были использованы для определения эффективных масс проводимости методом Кухарского и Субашиева [9].

Образцы для исследований и методика эксперимента

Исследованные в работе образцы были выращены методом направленной кристаллизации. Необходимые концентрации свободных носителей заряда были получены посредством добавления в ростовую шихту галогенидов висмута в материалы n -типа, избыточного теллура и теллуридов металлов – в материалы p -типа в необходимых соотношениях.

Регистрация спектров оптического поглощения и отражения была произведена при комнатной температуре (300 К) в конфигурации, при которой вектор напряженности электрического поля был перпендикулярен оси симметрии c_z . Измерение

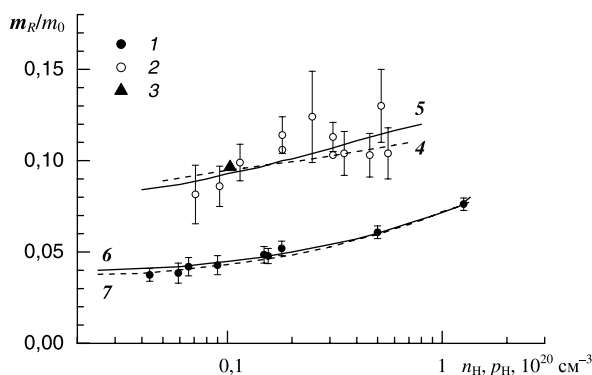


Рис. 1. Экспериментальные (символы) и рассчитанные (линии) концентрационные зависимости эффективных масс проводимости в $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ (1, 6, 7) и $p\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ (2 – 5) при $T = 300$ К; наши экспериментальные данные (1, 2) и из работы [4] (3).

Расчеты проведены по двухподзонной модели валентной зоны при следующих значениях m_{dh}/m_0 и ΔE_v : 0,7 и 0,035 эВ (4); 1,3 и 0,060 эВ (5), а также в рамках модели Кейна без учета (6) и с учетом (7) электрон-электронного взаимодействия

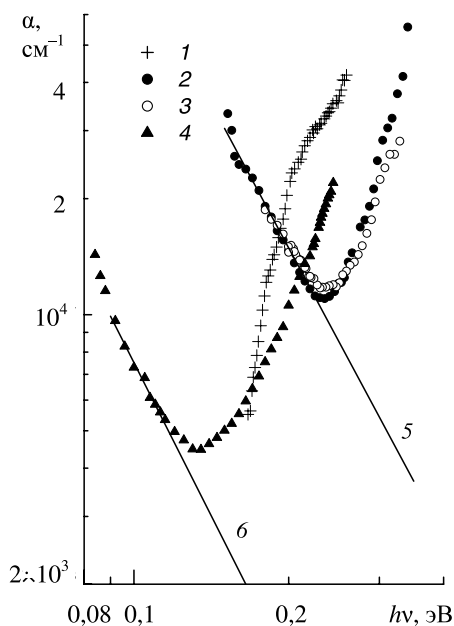


Рис. 2. Экспериментальные (символы) и экстраполированные (линии) спектральные зависимости коэффициента оптического поглощения в $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ (1 – 3, 5) и $p\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ (4, 6) при $T = 300$ К.

Значения холловских концентраций n_H (электронов) и p_H (дырок), 10^{18} , см^{-3} : 4,7 (1), 126 (2, 3), 52 (4); толщина образцов d , мкм: 1,65 (1), 1,21 (2), 1,90 (3), 2,88 (4). Экстраполяция поглощения свободными носителями заряда (5, 6)

коэффициента отражения было проведено с использованием поверхностей, полученных при помощи скалывания слитков. Для исследования спектров оптического поглощения требовались образцы с площадью

поверхности не меньшей, чем 1×1 мм². Они были выколоты из слитков и отсортированы. Их толщина d определялась по положению интерференционных максимумов в спектрах прозрачности.

Экспериментальные результаты

Концентрационные зависимости эффективных масс проводимости показаны на рис. 1 (при расчете эффективных масс было использовано значение высокочастотной диэлектрической проницаемости $\epsilon_\infty = 95$). Видно, что при сравнимых концентрациях свободных носителей заряда эффективные массы проводимости дырок m_{Rp} значительно больше таковых для электронов (m_{Rn}). Это позволяет предположить, что подзона, ответственная за появление дополнительных составляющих спектров межзонного поглощения с порогом E_{gi} , принадлежит валентной зоне теллурида висмута. Об этом же свидетельствуют и результаты исследования спектров оптического поглощения, которые представлены на рис. 2. Видно, что при высоких энергиях квантов света в сильно легированном теллуриде висмута наблюдается резкое возрастание коэффициента поглощения, свидетельствующее о достижении в исследованных образцах порогов межзонных переходов. При этом в образце с электронным типом проводимости порог межзонных переходов расположен при существенно больших энергиях квантов света, чем в $p\text{-Bi}_2\text{Te}_3$. Это не противоре-

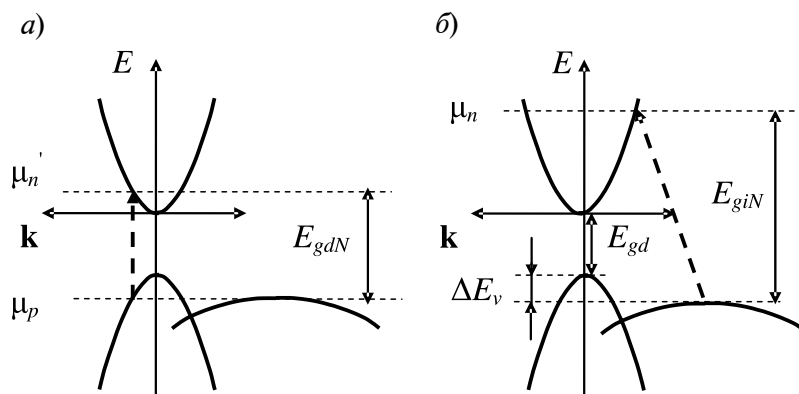


Рис. 3. Зонные схемы Bi_2Te_3 с высокими концентрациями дырок (а) и электронов (б), построенные в предположении, что дополнительная подзона, ответственная за появление не прямых межзонных оптических переходов электронов, принадлежит валентной зоне. Пунктирные стрелки – оптические переходы электронов на пороге межзонного поглощения

чит высказанному выше предположению о принадлежности дополнительной подзоны валентной зоне теллурида висмута.

Действительно, если в Bi_2Te_3 дополнительная подзона с большой эффективной массой плотности состояний расположена вблизи потолка валентной зоны (рис. 3, а), то при ее заполнении дырками должна заметно снижаться скорость изменения химического потенциала дырок μ_p . Поэтому смещение края собственного поглощения в сильно легированном $p\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ будет незначительным. Наоборот, в образцах с электронным типом проводимости скорость изменения химического потенциала электронов μ_n с ростом концентрации свободных носителей заряда определяется свойствами единственной подзоны зоны проводимости (рис. 3, б). Следовательно, смещение края собственного поглощения в них должно быть больше. Более того, ввиду заметного различия эффективных масс плотности состояний в основном (m_{dl}) и дополнительном (m_{dh}) экстремумах валентной зоны, в сильно легированных образцах может измениться и характер оптических переходов на пороге межзонного поглощения: в $p\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ они будут прямыми, а в $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ — непрямыми.

Расчет спектров межзонного поглощения в теллуриде висмута

Тип оптических переходов на пороге межзонного поглощения в теллуриде висмута определялся путем расчета спектров межзонного поглощения. Для этого, прежде всего, было необходимо выделить составляющие, связанные с межзонными переходами, из экспериментальных спектров, так как в сильно легированном теллуриде висмута они расположены на фоне большого по величине поглощения свободными носителями заряда α_{fc} . Как известно, $\alpha_{fc} \sim (h\nu)^{-n}$. Эта особенность поглощения свободными носителями заряда позволяет легко выделить спектры межзонного поглощения из экспериментальных кривых посредством вычитания составляющих α_{fc} , экстраполированных в коротковолновую область по степенному закону. Отметим, что в двойном логарифмическом масштабе,

в котором представлены данные на рис. 2, зависимости $\alpha_{fc}(h\nu)$ изображаются прямыми линиями 5, 6. Полученные при этом результаты показаны на рис. 4 (кривые 2, 3).

Напротив, при анализе экспериментальных данных для теллурида висмута с низкими концентрациями свободных носителей заряда можно использовать экспериментальные значения α , представленные на рис. 4 кривой 1. На это указывают результаты работ [1, 4], согласно которым в теллуриде висмута с низкими концентрациями электронов и дырок при $h\nu \geq E_{gd}$ значения α , обусловленные межзонными оптическими переходами электронов, на порядок и более превышают величины коэффициента поглощения свободными носителями заряда α_{fc} . Именно поэтому в указанной области спектра можно пренебречь вкладом свободных носителей заряда в величины коэффициента поглощения образцов с низкими значениями n_H .

Расчет спектров межзонного поглощения был произведен по формулам

$$\alpha_N = \alpha_0 \times \left[1 + \exp \frac{E_{gd} + \mu_p(1 + m_{dp}/m_{dn}) - h\nu}{(1 + m_{dp}/m_{dn})kT} \right]^{-1}; \quad (1)$$

$$\alpha_i \sim \int_0^b \sqrt{E_c(b - E_c)}(1 - f_c) dE_c, \quad (2)$$

справедливым для описания прямых (α_N) и непрямых (α_i) межзонных переходов.

В формулах (1) и (2) α_N , α_0 — коэффициенты поглощения света в легированном и «чистом» (с невырожденным газом свободных носителей заряда) образцах соответственно, $\alpha_0 \sim (h\nu - E_{gd})^{1/2}$; E_c — энергия электронов в зоне проводимости, отсчитываемая от ее дна;

$$b = h\nu - E_{gd} - \Delta E_v + h\nu_{ph}$$

(энергией фонона $h\nu_{ph}$ в расчетах пренебрегалось); ΔE_v — энергетический зазор между основной и дополнительной подзонами валентной зоны; f_c — фермиевская функция.

При расчете коэффициента поглощения α_N в сильно легированном теллуриде висмута была использована зависимость $\alpha_0(h\nu)$, найденная при помощи усреднения экс-



периментальных данных, полученных как в настоящей работе, так и в работах [2, 3]. Она представлена на рис. 4 (кривая 4). Значение ширины запрещенной зоны E_{gd} для прямых переходов в Bi_2Te_3 , усредненное с надежностью $s = 0,95$, оказалось равным $0,155 \pm 0,008$ эВ.

Результаты расчетов, выполненных по формулам (1) и (2), показаны на рис. 4. Видно, что в сильно легированных образцах тип оптических переходов на пороге межзонного поглощения действительно различен: в $p\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ ($p_n = 5,2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$), как и в $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ с низкой концентрацией свободных электронов ($n_n = 4,7 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$), межзонные переходы — прямые, а в сильно легированном $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ ($n_n = 1,26 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$) — не прямые.

Заметно различаются в сильно легированном теллуриде висмута и значения оптической ширины запрещенной зоны E_{gN} . В образце с проводимостью p -типа

$$E_{gdN} = E_{gd} + \mu_p + \mu'_n = 0,19 \text{ эВ},$$

где μ'_n — энергия состояния в зоне проводимости, в котором завершается прямой оптический переход электрона из валентной зоны, который начинается из состояния с энергией $E = \mu_p$, (см. рис 3, а), тогда как в $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ ($n_n = 1,26 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$)

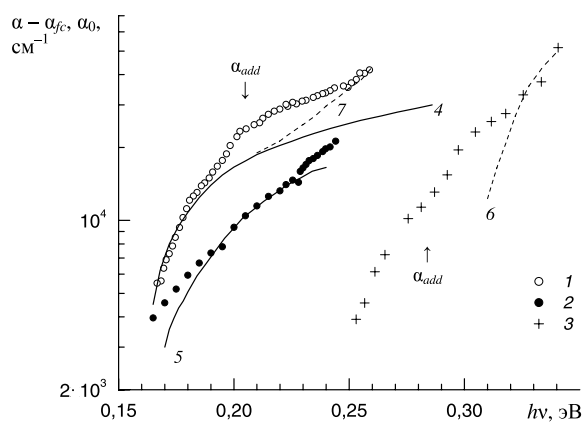


Рис. 4. Экспериментальные (символы) и рассчитанные (линии) спектральные зависимости коэффициента межзонного поглощения $\alpha - \alpha_{fc}$ в $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ (1, 3, 6, 7) и $p\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ (2, 5), а также составляющей α_0 (4) в $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ при $T = 300$ К.

Расчеты по формулам (1) (кривая 5) и (2) (кривые 6, 7).

$$E_{giN} = E_{gi} + \mu_n = (0,355 \pm 0,026) \text{ эВ}.$$

Величина порога не прямых межзонных переходов E_{gi} в образцах с невырожденным газом свободных носителей заряда была определена при помощи расчета, выполненного по формуле (2). Оказалось, что она равна $0,20 \pm 0,01$ эВ.

Приведенные выше результаты согласуются с нашим предположением о том, что подзона, ответственная за появление дополнительной составляющей межзонного поглощения с порогом E_{gi} , находится в валентной зоне теллурида висмута. Различие в величинах энергетических порогов для не прямых и прямых межзонных оптических переходов в образцах с низкими холловскими концентрациями свободных носителей заряда позволяет принять величину энергетического зазора между основной и дополнительной подзонами валентной зоны ΔE_v равной $0,025 - 0,065$ эВ.

В заключение этого раздела отметим следующее. Данные, приведенные на рис. 4, свидетельствуют о замаскированном характере составляющих спектров межзонного поглощения, обусловленных непрямыми переходами электронов из дополнительной подзоны валентной зоны в зону проводимости. Эти составляющие закрываются полосами дополнительного поглощения α_{add} большой интенсивности. Достаточно сравнить кривые 1 и 7, а также 3 и 6 на рис. 4 (полосы α_{add} отмечены стрелками). Аналогичные полосы, маскирующие порог прямых межзонных переходов, но меньшей протяженности в шкале энергий, были выявлены в работе [1] при анализе имеющихся в литературе данных по оптическому поглощению в теллуриде висмута, а также в исследованных там же твердых растворах $\text{Bi}_{0,5}\text{Sb}_{1,5}\text{Te}_3$. Впоследствии подобные особенности оптических спектров, приводящие к маскировке порога прямых межзонных переходов, были обнаружены также авторами работы [10] при исследовании коэффициента поглощения в других твердых растворах на основе Bi_2Te_3 . Детальный анализ природы полос α_{add} , проведенный в работах [1, 10], показал, что они связаны с «хвостами» плотности локализованных со-

стояний, расположенными в запрещенной зоне. В работах [1, 10] было также установлено, что составляющие α_{add} обладают двумя особенностями, позволяющими их выявить в спектрах оптического поглощения. Во-первых, для них характерна исключительно высокая скорость возрастания значений α_{add} при увеличении энергий квантов света. Во-вторых, спектральные зависимости $\alpha_{add}(h\nu)$ спрямляются не только в координатах $\alpha_{add}^{1/2} - h\nu$, обычно применяемых при анализе непрямых оптических переходов в полупроводниках, но и в координатах $\ln \alpha_{add} - h\nu$, соответствующих эмпирической формуле Урбаха:

$$\alpha_{add} = A \cdot \exp - \frac{\gamma(E_{gd} - h\nu)}{kT}, \quad (3)$$

где A, γ – подгоночные параметры.

С учетом второй из указанных особенностей величины E_{gi} для непрямых межзонных переходов в теллуриде висмута и его аналогах следует находить путем сопоставления экспериментальных данных с результатами расчета по формуле (2), а не из построения зависимостей $\alpha^{1/2} - h\nu$.

Полосы α_{add} , выявленные в настоящей работе, обладают такими же особенностями, как и аналогичные составляющие спектров $\alpha(h\nu)$, маскирующие порог прямых межзонных переходов в теллуриде висмута и твердых растворах на его основе. Поэтому эти полосы можно связать с «хвостами» плотности локализованных состояний, расположенными в запрещенной зоне. Значительная протяженность рассматриваемых полос по шкале энергий (она существенно больше, чем у полос α_{add} , обнаруженных в работе [1]) связана, скорее всего, с низкой подвижностью дырок в дополнительной подзоне, обладающей большой эффективной массой. Это приводит к резкому укорочению времени жизни дырок в конкретном квантовом состоянии и, в свою очередь, к появлению заметной по величине неопределенности в энергии «тяжелых» дырок (в силу известного соотношения $\Delta E \cdot \Delta t \sim \hbar$). Вследствие этого, часть «тяжелых» дырок, обладающих наименьшей кинетической энергией, может быть локализована. Теоретически этот вопрос впервые был рас-

смотрен автором работы [11].

Концентрационные зависимости эффективных масс проводимости в теллуриде висмута

Продолжим рассмотрение данных, представленных на рис. 1. Результаты, полученные при исследовании спектров оптического поглощения, позволяют считать, что зависимость $m_{Rn}(n_H)$ можно описать в рамках одноподзонной модели зоны проводимости, тогда как для описания зависимости $m_{Rp}(p_H)$ требуется привлечение более сложной, двухподзонной модели валентной зоны. При этом следует учесть непараболичность законов дисперсии электронов и дырок вблизи абсолютных зонных экстремумов. Необходимость учета непараболичности обусловлена как прямоzonностью теллурида висмута, так и возрастанием эффективных масс проводимости электронов при увеличении n_H , выявленном в эксперименте. В связи с этим было необходимо установить вид законов дисперсии свободных носителей заряда вблизи абсолютных экстремумов электронной и дырочной зон. С этой целью мы использовали экспериментальные результаты, полученные в работах [12, 13], в которых при $T = 1,6$ К были исследованы осцилляции Шубникова – Де Гааза и определены циклотронные эффективные массы m_c в n - и p - Bi_2Te_3 в широких интервалах холловских концентраций электронов и дырок.

Концентрационные зависимости эффективных масс свободных носителей заряда в полупроводниках с непараболическим законом дисперсии, как правило, удовлетворяют модели Кейна. В соответствии с этой моделью, в сильно вырожденных образцах при гелиевых температурах, когда производная от фермиевской функции df/dE может быть заменена δ -функцией, концентрационная зависимость эффективных масс плотности состояний описывается выражением

$$m_{dn}^2 = m_{d0n}^2 \left[1 + \frac{(3n_H)^{2/3} h^2}{2m_{d0n} E_{gn}^* \pi^{2/3}} \right]. \quad (4)$$

В этой формуле, записанной для полупроводника с электронным типом про-



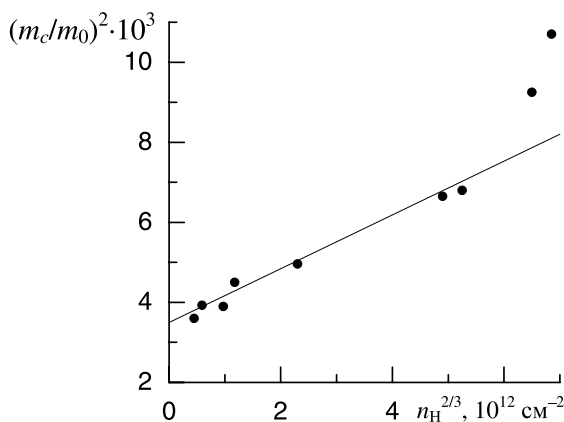
водимости, m_d , m_{d0n} — эффективные массы плотности состояний на уровне Ферми и на дне зоны проводимости соответственно; E_g^* — эффективный зазор взаимодействия, который может быть либо равен оптической ширине запрещенной зоны E_{gd} , когда в формировании законов дисперсии электронов и дырок участвуют только две зоны, разделенные запрещенной щелью, либо отличаться от нее, если в формировании законов дисперсии электронов и дырок, наряду с основными, участвуют и дополнительные зоны, удаленные в шкале энергий от запрещенной щели.

Из формулы (4) следует, что в случае справедливости модели Кейна зависимость $m_{dn}(n_H)$ должна спрямляться в координатах $m_{dn}^2 - n_H^{2/3}$. Аналогичной концентрационной зависимостью должны обладать и циклотронные эффективные массы, поскольку они связаны с эффективными массами плотности состояний простым соотношением

$$m_{cn} = m_{dn} M^{-2/3} K^{-1},$$

в котором M — число эквивалентных долин (как в n -, так и в p - Bi_2Te_3 $M = 6$), K — множитель, зависящий в соединениях $A_5^2B_6^3$ от величин компонент тензора обратных эффективных масс в экстремуме зоны $\alpha_i = m_0/m_i$ (m_i — эффективная масса вдоль i -й оси эллипсоида постоянной энергии), угла θ между осью z эллипсоида постоян-

а)



ной энергии и осью c_3 кристалла и от направления вектора магнитной индукции $\mathbf{B}$.

Анализ данных, полученных в работах [12, 13], результаты которого представлены на рис. 5, показал, что концентрационные зависимости циклотронных эффективных масс в n - и p - Bi_2Te_3 действительно спрямляются в координатах $m_{cn}^2 - n_H^{2/3}$; $m_{cp}^2 - p_H^{2/3}$. Это свидетельствует о том, что законы дисперсии электронов и дырок в теллуриде висмута действительно могут быть описаны в рамках модели Кейна.

Отметим, однако, что величины эффективных зазоров взаимодействия в n - и p - Bi_2Te_3 оказались различными:

$$E_{gn}^* = 0,275 \pm 0,025 \text{ эВ};$$

$$E_{gp}^* = 0,355 \pm 0,015 \text{ эВ}.$$

Кроме того, эти значения не равны ширине запрещенной зоны E_g теллурида висмута, величина которой при 4,2 К составляет 0,2 эВ. Неодинаковыми оказались в n - и p - Bi_2Te_3 и эффективные массы плотности состояний в экстремумах электронной (m_{d0n}) и дырочной (m_{d0p}) зон. Они были определены по отсечкам прямых $m_{cn}^2(n_H^{2/3})$ и $m_{cp}^2(p_H^{2/3})$ на осях ординат (см. рис. 5), поскольку при $\mathbf{B} \parallel c_3$ величины параметров K_n и K_p следуют выражению

$$K_{n(p)} = [(\alpha_3 / \alpha_1) \sin^2 \theta + \cos^2 \theta]^{1/2}; \quad (5)$$

по данным Кёллера [12, 13] их значения составляют:

б)

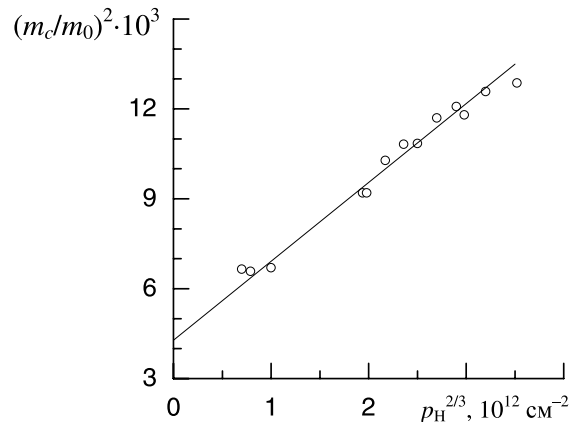


Рис. 5. Зависимости приведенных величин циклотронных эффективных масс от холловских концентраций n_H (а) и p_H (б) при $T = 1,6$ К. Получены с использованием экспериментальных данных, приведенных в работах [12, 13]

$$K_n = 1,32 \pm 0,05; K_p = 1,37 \pm 0,05.$$

Оказалось, что $m_{d0n} = 0,270m_0$, а $m_{d0l} = 0,215m_0$.

Наблюдаемые при $T = 1,6$ К различия в величинах E_{gn}^* , E_{gp}^* и E_g , а также в значениях эффективных масс плотности состояний в экстремумах зон (m_{d0n} , m_{d0l}) свидетельствуют о том, что в формировании законов дисперсии электронов и дырок в теллуриде висмута, наряду с основными, участвуют и дополнительные зоны, удаленные в шкале энергий от запрещенной щели. Это означает, что законы дисперсии электронов и дырок в теллуриде висмута, занимающих состояния вблизи основных зонных экстремумов, должны описываться в рамках обобщенной модели Кейна, в которой $E_g^* \neq E_{gd}^*$. В таком случае скорости температурных изменений эффективных зазоров взаимодействия E_{gn}^* и E_{gp}^* в Bi_2Te_3 могут не соответствовать скорости температурного изменения прямой запрещенной щели E_{gd}^* . Поэтому при подгонке расчетных кривых

$$m_{Rn} = m_{R0n} \frac{{}_0L_0^{3/2}(\mu_n^*, \beta_n^*)}{{}_0L_{-1}^{3/2}(\mu_n^*, \beta_n^*)}, \quad (6)$$

описывающих концентрационные зависимости эффективных масс проводимости m_{Rn} в модели Кейна, к экспериментальным данным для $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$, имеется возможность независимым образом варьировать три параметра модели: E_{gn}^* , m_{d0n} и величину эффективной массы проводимости m_{R0n} на дне зоны. Отметим, что эффективная масса плотности состояний на дне зоны m_{d0n} входит в формулу для концентрации свободных электронов:

$$n_n = \frac{8\pi}{3h^3} (2m_{d0n}kT)^{3/2} \cdot {}_0L_0^{3/2}(\mu_n^*, \beta_n^*), \quad (7)$$

где $\mu_n^* = \mu_n/kT$ — приведенный химический потенциал; $\beta_n^* = kT/E_{gn}^*$ — параметр непараболичности; ${}_nL_k^m(\mu^*, \beta^*)$ — обобщенные интегралы Ферми, определяемые выражением

$${}_nL_k^m(\mu^*, \beta^*) = \int_0^\infty \left(-\frac{df}{dz} \right) z^n (z + \beta z)^m \times \\ \times (1 + 2\beta z)^k dz \quad (8)$$

($z = E/kT$ — приведенная энергия).

Это обстоятельство позволяет оценить

величины двух параметров зонного спектра $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ из трех.

Существенно более сложной оказывается ситуация в теллуриде висмута с проводимостью p -типа. В этом материале, вследствие существования малого по величине энергетического зазора ΔE_v между основным и дополнительным экстремумами валентной зоны (см. рис. 3, б), величины эффективных масс проводимости m_{Rp} должны зависеть от параметров обеих подзон:

$$\frac{p_H}{m_{Rp}} = \frac{p_l}{m_{Rl}} + \frac{p_h}{m_{Rh}}, \quad (9)$$

где p_l , p_h — величины парциальных концентраций дырок в основной и дополнительной подзонах валентной зоны соответственно; m_{Rl} , m_{Rh} — эффективные массы проводимости дырок, заполняющих эти подзоны.

Поэтому число зонных параметров (их величины могут независимым образом варьироваться при подгонке расчетных зависимостей $m_{Rp}(p_H)$ к экспериментальным данным) в $p\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ возрастает до шести даже в том случае, если дополнительную подзону валентной зоны с большой эффективной массой плотности состояний (подзону «тяжелых» дырок) считать параболической. К параметрам основной подзоны (подзоны «легких» дырок) с кейновским законом дисперсии E_{gp}^* , m_{d0l} и m_{R0l} , соответствующим аналогичным параметрам зоны проводимости, добавляется еще три: эффективные массы плотности состояний m_{dh} и проводимости m_{Rh} в подзоне «тяжелых» дырок, а также ΔE_v . Причем известной (в какой-то мере) среди них можно считать только величину энергетического зазора между неэквивалентными экстремумами валентной зоны ΔE_v .

Очевидно, что на данном этапе исследований невозможно выполнить корректную оценку величин всех зонных параметров теллурида висмута, перечисленных выше; большинство из них можно варьировать независимо друг от друга. В связи с этим первоочередная цель расчетов концентрационных масс проводимости в Bi_2Te_3 , выполненных в настоящей работе, состояла в том, чтобы показать вполне удовлетворительное соответствие концентрационных



зависимостей $m_{Rn}(n_H)$ и $m_{Rp}(p_H)$ обсуждавшейся выше модели зонного спектра данного соединения. И лишь затем при помощи расчетов зависимостей $m_{Rn}(n_H)$ и $m_{Rp}(p_H)$ следовало оценить величины тех зонных параметров теллурида висмута, которые оказывают наиболее сильное влияние на величины эффективных масс проводимости в этом материале.

Результаты выполненных расчетов показаны линиями на рис. 1. Они доказывают, что экспериментальные данные для $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ действительно могут быть описаны в рамках обобщенной модели Кейна. При подгонке расчетных кривых к экспериментальным данным были учтены результаты, полученные при исследовании спектров оптического поглощения в сильно легированном $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$; и прежде всего тот результат, что величина приведенного химического потенциала μ^* в нем составляет $6,0 \pm 0,4$. Его учет позволил существенным образом ограничить диапазон допустимых вариаций параметра m_{d0n} . Оказалось, что расчетные кривые могут быть совмещены с экспериментальными точками в тех случаях, когда величины параметров зонного спектра изменяются в пределах:

$$\begin{aligned}m_{d0n} &= (0,19 - 0,28)m_0; \\m_{R0n} &= (0,014 - 0,023)m_0; \\\beta^* &= 0,200 - 0,275.\end{aligned}$$

Неожиданной оказалась большая величина параметра β^* , указывающая на то, что в $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ при комнатной температуре $E_{gn}^* < E_{gd}^*$, тогда как при $T = 1,6$ К, по данным работы [12], $E_{gn}^* > E_{gd}^*$. С одной стороны, резкое уменьшение величины эффективного зазора взаимодействия E_{gn}^* при комнатной температуре может быть следствием перестройки зонного спектра Bi_2Te_3 ; такая перестройка приводит к изменению величин энергетических зазоров между дном зоны проводимости и остальными ветвями зонного спектра, которые вносят вклад в закон дисперсии электронов. С другой стороны, это уменьшение может быть вызвано влиянием обменного взаимодействия свободных электронов [14], которое не было учтено в расчетах.

Согласно результатам работы [14], сужение прямой запрещенной щели за счет обменного взаимодействия свободных носителей заряда должно быть пропорционально кубическому корню из их концентрации. В полупроводниках с кейновским законом непараболичности, в которых $E_g^* = E_{gd}^*$, обменное взаимодействие имеет свою специфику. Она состоит в том, что уменьшение запрещенной зоны за счет обменного взаимодействия свободных носителей заряда любого знака должно сопровождаться соответствующим возрастанием обоих параметров непараболичности: как β_n^* , так и β_p^* .

Оценить степень влияния каждого из указанных факторов на величины эффективных зазоров взаимодействия в теллуриде висмута чрезвычайно трудно. Зонный спектр этого соединения до сих пор неизвестен. Это обстоятельство полностью исключает саму возможность теоретической оценки величин E_{gn}^* и E_{gp}^* в этом материале и тем более характера их изменения при увеличении температуры. Кроме того, необходимо учитывать сам факт отличия эффективных зазоров взаимодействия в теллуриде висмута от оптической ширины запрещенной зоны E_{gd}^* . Как следствие, изменения величин этих зазоров и ширины запрещенной зоны за счет обменного взаимодействия свободных носителей заряда также могут быть различными.

Заметим, однако, что различие между величинами E_{gn}^* и E_{gd}^* в теллуриде висмута значительно меньше, чем между E_{gp}^* и E_{gd}^* . Это позволяет надеяться, что сужение запрещенной зоны за счет обменного взаимодействия электронов может принести заметный вклад и в изменение величины E_{gn}^* в этом материале. Поэтому именно для $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ можно провести модельные расчеты зависимостей $m_{Rn}(n_H)$ в предположении, что уменьшение величины параметра E_{gn}^* в нем пропорционально $n_H^{1/3}$. Такими расчетами можно показать, что обменное взаимодействие электронов действительно влияет на возрастание параметра β_n^* в $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$.

Один из результатов модельных расчетов показан на рис. 1 (кривая 7). Оказалось, что согласие экспериментальных и расчет-

ных зависимостей $m_{Rn}(n_H)$ достигается, если при $n_H = 2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ величины зонных параметров $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ составляют

$$m_{d0n} = (0,27 - 0,31)m_0;$$

$$m_{R0n} = (0,019 - 0,022)m_0;$$

$$E_{gn}^* = (0,17 - 0,21) \text{ эВ},$$

а при возрастании концентрации электронов параметр E_{gn}^* уменьшается на величину $(9 \cdot 10^{-9} n_H^{1/3}) \text{ эВ}$ (величина n_H должна измеряться в см^{-3}).

Этот результат показывает, что обменное взаимодействие свободных носителей заряда может заметным образом влиять на величины параметров зонного спектра Bi_2Te_3 и оно должно приниматься во внимание при анализе экспериментальных данных, полученных для этого материала.

Рассмотрим теперь результаты расчетов зависимостей $m_{Rp}(p_H)$. Как и ожидалось, расчетные кривые для $p\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ действительно удовлетворяют двухподзонной модели валентной зоны (см. рис. 1, кривые 4, 5). Поскольку в теллуриде висмута предполагалось существенное различие между эффективными массами плотности состояний в основной и дополнительной подзонах валентной зоны, расчет зависимостей $m_{Rp}(p_H)$ включал оценку эффективных масс проводимости m_{Rh} и плотности состояний m_{dh} в подзоне «тяжелых» дырок; закон дисперсии в последней считался параболическим. Оказалось, что расчетные кривые согласуются с экспериментальными точками, если

$$\Delta E_v = 0,035 - 0,065 \text{ эВ};$$

$$m_{dh} = (0,7 - 1,5)m_0;$$

$$m_{Rh} = (0,15 - 0,28)m_0.$$

Существенное различие между величинами m_{dh} и m_{Rh} свидетельствует о многодолинности и сильной анизотропии подзоны «тяжелых» дырок.

Таким образом, выполненные в работе исследования позволили систематизировать и в значительной мере конкретизировать существующие представления о строении зонного спектра теллурида висмута при комнатной температуре. Эти данные, наряду с наиболее точными результатами, полу-

ченными в Bi_2Te_3 при гелиевых температурах, позволяют проследить за изменениями энергетического спектра теллурида висмута в интервале температур 1,6 – 300 К. Зонные схемы для теллурида висмута при температурах жидкого гелия и комнатной показаны на рис. 6. Зонная схема Bi_2Te_3 при температуре жидкого гелия (рис. 6, а) была построена с учетом результатов исследования квантовых осцилляций [4, 12, 13]. В соответствии с ними подзоны «легких» электронов и дырок являются основными зонными экстремумами и в этой температурной области. Следовательно, можно считать, что и при температуре жидкого гелия теллурид висмута представляет собой прямозонный полупроводник. Отметим, что представленная зонная схема Bi_2Te_3 (см. рис. 6, а) согласуется и качественно, и количественно (в пределах ошибок эксперимента и расчетов) с данными работы [6].

Однако до сих пор остается открытым вопрос о существовании дополнительной подзоны в зоне проводимости теллурида висмута (на рис. 6, а эта подзона показана пунктиром). Особенности, связываемые с дополнительной подзоной, многократно наблюдались при исследовании квантовых осцилляций в $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ [4, 12]. Автору работы [12] даже удалось оценить величину эффективной массы плотности состояний в этом экстремуме (по его данным $m_{ch} = 3,0m_0$). Однако до сих пор не представлено убедительных доказательств существования подзоны «тяжелых» электронов с использованием других экспериментальных методов. Нет их и в настоящей работе. Но это обстоятельство ни в коем случае не свидетельствует об отсутствии в Bi_2Te_3 подзоны «тяжелых» электронов. В этом полупроводнике может реализовываться ситуация, подобная существующей в $p\text{-PbSe}$ [15]. Вследствие обменного взаимодействия свободных дырок, величина ΔE_v в селениде свинца (PbSe) возрастает настолько быстро, что подзона «тяжелых» дырок не проявляется ни в концентрационных зависимостях эффективных масс проводимости, ни в спектрах оптического поглощения сильно легированных образцов – в них она маскируется краем фундаментальной полосы.

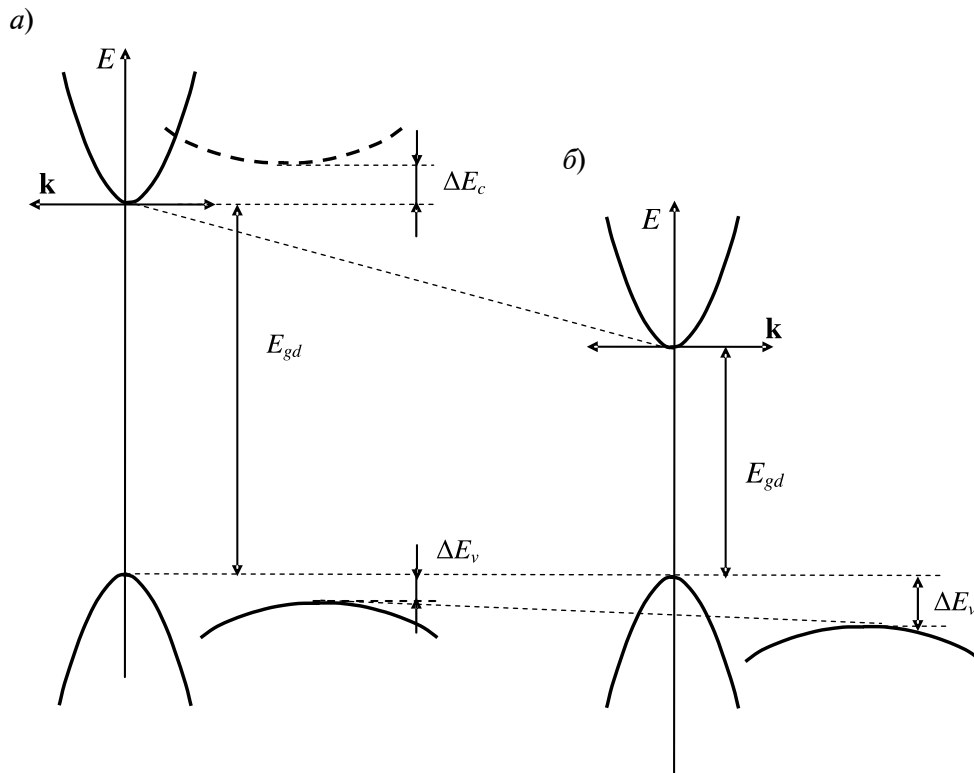


Рис. 6. Зонные схемы Bi_2Te_3 при температурах 4 К (а) и 300 К (б), построенные в соответствии с экспериментальными данными: $\Delta E_c = 0,024 - 0,030$ эВ; $\Delta E_{gd} = 0,200$ эВ (а) и $(0,155 \pm 0,09)$ эВ (б); $\Delta E_v = 0,020$ эВ (а) и $0,025 - 0,065$ эВ (б)

Поэтому обоснованное заключение о существовании или об отсутствии в теллуриде висмута подзоны «тяжелых» электронов может быть сделано только после проведения детальных и всесторонних исследований спектров оптического поглощения в образцах с различными значениями n_H в широком интервале температур.

Таким образом, в настоящей работе при $T = 300$ К впервые исследованы спектральные зависимости коэффициента отражения теллурида висмута в широких интервалах холловских концентраций электронов и дырок, а также оптическое

поглощение в образцах с высокими концентрациями свободных носителей заряда. Полученные при этом данные позволили построить зонную схему изучаемого полупроводника и проследить за ее изменениями в интервале температур (4,2–300) К. По-прежнему остался открытым вопрос о существовании в изучаемом материале подзоны «тяжелых» электронов. Для его решения необходимы детальные исследования спектров оптического поглощения $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$, выполненные в образцах с различными холловскими концентрациями электронов в широком интервале температур.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Вейс, А.Н. Оптическое поглощение в $\text{Bi}_{0.5}\text{Sb}_{1.5}\text{Te}_3$ в области края фундаментальной полосы [Текст] / А.Н. Вейс // Известия вузов. Физика. — 2008. — № 7. — С. 50–52.
2. Greenaway, D.L. Band structure of bismuth telluride, bismuth selenide and their respective alloys [Text] / D.L. Greenaway, G. Harbeke // J.

Phys. Chem. Solids. — 1965. — Vol. 26. — № 10. — P. 1585–1604.

3. Зи, С. Физика полупроводниковых приборов. [Текст]: в 2 кн. Кн. 2. / С. Зи. — М.: Мир, 1984. — 455 с.

4. Гольцман, Б.М. Полупроводниковые термоэлектрические материалы на основе

Bi_2Te_3 [Текст] / Б.М. Гольцман, В.А. Кудинов, И.А. Смирнов. — М.: Наука, 1972. — 320 с.

5. **Urazhdin, S.** Surface effects in layered semiconductors Bi_2Se_3 and Bi_2Te_3 [Text] / S. Urazhdin, D. Blic, S.D. Mathandi [et al.] // Phys. Rev. B. — 2004. — Vol. 69. — P. 085313-1–085313-7.

6. **Kioupakis, E.** Quasiparticle electronic structure of bismuth telluride in the GW approximation [Text] / E. Kioupakis, M.L. Tiago, S.G. Louie // Phys. Rev. B. — 2010. — Vol. 82. — P. 245203-1–245203-4.

7. **Funagai, K.** Tunneling spectroscopy of band edge structures of Bi_2Te_3 and Sb_2Te_3 [Text] / K. Funagai, Y. Miyahara, H. Ozaki [et al.] // Proc. of fifteenth Int. Conf. on Thermoelectrics (ICT' 96), March 26 – 29, 1996. Pasadena, California USA. — P. 408–411.

8. **Житинская, М.К.** Исследование локального энергетического спектра монокристаллов $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_3$ [Текст] / М.К. Житинская, Л.Д. Иванова, С.А. Немов [и др.] // Докл. XI Межгосударственного семинара «Термоэлектрики и их применения». — СПб.: Изд-во ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН, 2008. — С. 83–88.

9. **Кухарский, А.А.** Определение некоторых параметров сильно легированных полупроводников из спектрального хода коэффициента отражения [Текст] / А.А. Кухарский, В.К. Субашиев // ФТТ. — 1966. — Т. 8. — Вып. 3. — С. 753–757.

10. **Вейс, А.Н.** Ширина запрещенной зоны и тип оптических переходов на пороге межзонного поглощения в твердых растворах на основе теллурида висмута [Текст] / А.Н. Вейс, Л.Н. Лукьянова, В.А. Кутасов // ФТТ. — 2012. — Т. 54. — Вып. 11. — С. 2051–2057.

11. **Radkowsky, A.** Temperature dependence of electron energy levels in solids [Text] / A. Radkowsky // Phys. Rev. — 1948. — Vol. 73. — № 7. — P. 749–761.

12. **Köhler, H.** Non-parabolic $E(k)$ relation of the lowest conduction band in Bi_2Te_3 [Text] / H. Köhler // Physica Status Solidi (b). — 1976. — Vol. 73. — № 1. — P. 95–104.

13. **Köhler, H.** Non-parabolicity of the highest valence band of Bi_2Te_3 from Shubnikov – de Haas effect [Text] / H. Köhler // Physica Status Solidi (b). — 1976. — Vol. 74. — № 2. — P. 591–600.

14. **Бонч-Бруевич, В.Л.** Вопросы электронной теории сильно легированных полупроводников [Текст] / В.Л. Бонч-Бруевич // В сб.: Итоги науки. Физика твердого тела. — М.: ВИНТИ, 1965. — С. 127–224.

15. **Вейс, А.Н.** Влияние обменного взаимодействия электронов на параметры зонной структуры и примесных состояний в селениде свинца [Текст] / А.Н. Вейс // Физика и техника полупроводников. — 1991. — Т. 25. — Вып. 11. — С. 846–854.

REFERENCES

1. **Veis A.N.** Fundamental band edge optical absorption in $\text{Bi}_{0.5}\text{Sb}_{1.5}\text{Te}_3$. Russ. Phys. J., 2008. — № (7). — S. 714–717. (rus)

2. **Greenaway D.L., Harbeke G.** Band structure of bismuth telluride, bismuth selenide and their respective alloys. J. Phys. Chem. Solids, 1965. — Vol. 26. — № 10. — P. 1585–1604.

3. **Sze S.M.** Physics of semiconductor devices. Second edition. A Wiley-Interscience publication. John Wiley & Sons. New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore, 1981.

4. **Goltsman B.M., Kudinov V.A., Smirnov I.A.** Semiconductor thermoelectric materials on basis of Bi_2Te_3 . Moscow, Nauka, 1972. — 319 s. (rus)

5. **Urazhdin S., Blic D., Mathandi S.D., Tesmer S.H., Kyratsi T., Kanatzidis M.G.** Surface effects in layered semiconductors Bi_2Se_3 and Bi_2Te_3 . Phys. Rev. B: Condens. Matter, 2004. — Vol. 69. — P. 085313-1–085313-7.

6. **Kioupakis E., Tiago M.L., Louie S.G.** Quasiparticle electronic structure of bismuth telluride in the GW approximation. Phys. Rev. B: Condens. Matter. — 2010. — Vol. 82. — P. 245203-1–245203-4.

7. **Funagai K., Miyahara Y., Ozaki H., Kulbachinskii V.A.** Tunneling spectroscopy of band edge

structures of Bi_2Te_3 and Sb_2Te_3 . In Proceedings of the International Conference on thermoelectrics, Pasadena, California, United States, March 26–29, 1996. — P. 408–411.

8. **Zhitinskaya M.K., Ivanova L.D., Nemov S.A., Rykov S.A., Svechnikova T.E.** Investigation of the local energy spectrum on $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_3$ ($x = 0$; 2) single crystals. Papers of XI Interstate seminar «Thermoelectrics and their applications» A.F. Ioffe Physical-Technical Institute, Russian Academy of Science, St.-Petersburg, November, 25 – 26, 2008. — S. 83 – 88. (rus)

9. **Kukharskii A.A., Subashiev V.K.** Determination of some parameters of heavy doped semiconductors from spectral run of reflection coefficient. Sov. Phys. Solid State, 1966. — Т. 8. — Vyp. 3. — S. 603–607. (rus)

10. **Veis A.N., Luk'yanova L.N., Kutasov V.A.** Band gap and type of optical transitions at the interband absorption edge in solid solutions based on bismuth telluride. Physics of Solid State. — 2012. — Т. 54. — № 11. — S. 2182–2188. (rus)

11. **Radkowsky A.** Temperature dependence of electron energy levels in solids. Phys. Rev. — 1948. — Vol. 73. — № 7. — P. 749–761.



12. **Köhler H.** Non-parabolic $E(k)$ relation of the lowest conduction band in Bi_2Te_3 . *Physica Status Solidi (b)*. — 1976. — Vol. 73. — № 1. — P. 95–104.

13. **Köhler H.** Non-parabolicity of the highest valence band of Bi_2Te_3 from Shubnikov – de Haas effect. *Physica Status Solidi (b)*. — 1976. — Vol. 74. — № 2. — P. 591–600.

14. **Bonch-Bruевич V.L.** Questions of electron

theory of heavy doped semiconductors. In Collection articles «The results of science». — Moscow: VINITI. — 1965. — S. 127–224. (rus)

15. **Veis A.N.** Influence of exchange interaction of electrons on parameters of band structure and impurity states of lead selenide. *Physics and Technics of Semiconductors*. — 1991. — Т. 25. — Вып. 11. — S. 1934–1940. (rus)

ВЕЙС Александр Николаевич — доктор физико-математических наук, профессор кафедры физики полупроводников и наноэлектроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29.
alnveis@mail.ru

ЖИТИНСКАЯ Марина Константиновна — кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник кафедры интегральной электроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29.
m_zhitinskaya@mail.ru

ЛУКЪЯНОВА Лидия Николаевна — кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

194021, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26.
lidia.lukyanova@mail.ioffe.ru

КУТАСОВ Всеволод Александрович — кандидат технических наук, старший научный сотрудник Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

194021, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26.
v.kutasov@mail.ioffe.ru

УДК 537.226.33

В.Л. Борисов, М.Э. Борисова

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПОДВИЖНОСТИ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА В ПРОЗРАЧНОЙ СЕГНЕТОКЕРАМИКЕ

V.L. Borisov, M.E. Borisova

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

THE DETERMINATION OF THE CARRIER MOBILITY IN TRANSPARENT FERROELECTRIC CERAMICS

В работе исследован спад потенциала поверхности прозрачной сегнетоэлектрической керамики ЦТСЛ-9, который определяется процессами релаксации заряда. Экспериментальные результаты проанализированы на основе модели дисперсионного транспорта, предполагающей многократный захват носителей заряда на глубокие ловушки с последующим их термическим освобождением и движением через объем керамики. Зависимость подвижности носителей заряда от времени рассчитана для постоянной температуры.

КЕРАМИКА, ПОТЕНЦИАЛ, РЕЛАКСАЦИЯ ЗАРЯДА, ДИСПЕРСИОННЫЙ ТРАНСПОРТ, ПОДВИЖНОСТЬ, ЭНЕРГИЯ АКТИВАЦИИ, ЛОВУШКИ ЭЛЕКТРОНОВ.

The surface potential decay in transparent ferroelectric ceramics PLZT-9 determined by charge relaxation processes in ceramics has been studied. The experimental results were analyzed on the basis of dispersive transport model that proposed repeated trapping of charge carriers into deep traps with their consequent thermal releasing and moving through ceramics bulk. The time-dependence of carrier mobility at constant temperature was calculated.

CERAMICS, POTENTIAL, CHARGE RELAXATION, DISPERSIVE TRANSPORT, MOBILITY, ACTIVATION ENERGY, ELECTRON TRAPS.

Сегнетоэлектрическая керамика состава цирконат-титанат свинца, модифицированная лантаном (ЦТСЛ), обладающая электрооптическими свойствами, находит широкое применение в приборах и устройствах оптоэлектроники. Высокая чувствительность к воздействию внешнего электрического поля, хорошая оптическая однородность и большая прозрачность обусловили возможность использования керамики в системах обработки изображений, в светомодулирующих устройствах в качестве электроуправляемой фазовой пластинки, в оптических затворах и линейных транспарантах, для генерации второй оптической гармоники, стабилизации мощности световых потоков и оперативной голографической памяти с большой плотностью записи

информации [1].

Следует отметить, что исследованная в данной работе керамика ЦТСЛ-9/65/35 характеризуется высокой диэлектрической проницаемостью, имеет размытый фазовый переход, и это позволяет ее отнести к классу сегнетоэлектриков-релаксоров [2, 3].

Свойствами керамики можно управлять с помощью электрического поля. Одним из способов создания электрического поля в керамических материалах является облучение их поверхности сфокусированными пучками заряженных частиц. Время сохранения электрического поля и записанной информации зависит от скорости релаксации заряда, нанесенного на керамику в процессе записи информации. Наиболее существенное влияние на длительность со-

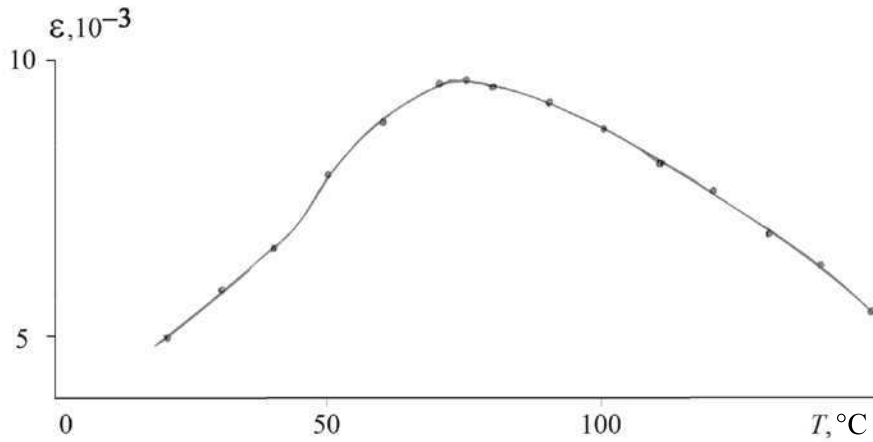


Рис. 1. Зависимость диэлектрической проницаемости от температуры для керамики ЦТСЛ 9/65/35. Измерения проводились на частоте 1кГц

хранения заряда оказывает электронная проводимость керамики, определяемая концентрацией свободных носителей заряда и их подвижностью μ .

Данная работа посвящена изучению механизма релаксации заряда, созданного на поверхности керамики, и определению оптимального режима работы оптоэлектронных приборов, позволяющего длительное время сохранять электрический заряд на керамике.

В настоящей работе предлагается новый метод нахождения подвижности свободных носителей заряда в керамике ЦТСЛ-9/65/35, сохраняющей сегнетоэлектрические свойства в широком диапазоне температур (рис. 1).

Из рисунка видно, что в температурном интервале от 20 до 150 °C в керамике имеет место размытый фазовый переход.

Микроскопические исследования показали, что керамика ЦТСЛ имеет неупорядоченную мелкокристаллическую структуру с большой концентрацией точечных и плоскостных дефектов [4, 5]. В запрещенной зоне (ее ширина равна примерно 3,15 эВ) находится целый спектр локальных квантовых состояний, созданных донорными и акцепторными дефектами. Доноры образуются при введении в решетку керамики ионов лантана вместо ионов свинца и ввиду наличия кислородных вакансий. Акцепторы возникают вследствие образования вакансий

ионов свинца. Концентрации доноров и акцепторов приблизительно равны, то есть керамика ЦТСЛ представляет собой сильно легированный компенсированный высокоомный полупроводник [6]. Как показали измерения электропроводности керамики ЦТСЛ-9/65/35 [4], для нее характерна проводимость p -типа, что может быть обусловлено некоторым превышением концентрации акцепторов (вакансий ионов свинца) над концентрацией доноров (ионы лантана, заместившие ионы свинца). Такая структура керамики обеспечивает наличие свободных ловушек носителей заряда с различной глубиной залегания. Это предполагает неравновесное заполнение ловушек, которые имеют некоторое распределение по энергии. Захваченные ловушками электроны за счет приобретаемой от решетки энергии могут покидать ловушки и дрейфовать под действием электрического поля. Следовательно, падение поверхностного потенциала с течением времени может быть обусловлено дрейфом носителей заряда от поверхности к подложке в условиях сильного перезахвата; последний заключается в их захвате в ловушки и последующем освобождении из них. Такой механизм переноса носителей заряда называется дисперсионным транспортом [7, 8]. В этом случае эффективная подвижность носителей заряда уменьшается с течением времени, что приводит к нелинейной зависимости $\lg(U_s) = f(t)$.

Экспериментальные данные

Образцы керамики толщиной 400 мкм заряжались в коронном разряде, который создавался в триодной конструкции, состоящей из игольчатого электрода, сетки и заземленного металлического диска. Керамика размещалась на диске, и ее зарядка до отрицательного потенциала в 200–300 В достигалась приложением к игле напряжения –6 кВ, а к сетке – напряжения –300 В в течение 80 с. Между ионами газового разряда и поверхностью керамики происходил обмен зарядами по механизму Оже-нейтрализации [9]. Носители заряда проникали в керамику и локализовались в тонком приповерхностном слое.

В результате образовывался электрет с гомозарядом, свойства которого характеризовались электретным поверхностным потенциалом. Электретный потенциал различных образцов измерялся методом компенсации с использованием вибрирующего электрода. В этом случае предполагалось, что заряд концентрируется в тонком приповерхностном слое образца вблизи границы раздела керамика – воздух. Максимальная напряженность электрического поля в керамике была приблизительно равна 6 кВ/см. Соотношение между плотностью поверхностного заряда Q и электретной разностью потенциалов U_s определяется выражением

$$U_s = Qh/\varepsilon_0\varepsilon,$$

где h – толщина керамики, $\varepsilon_0\varepsilon$ – ее абсолютная диэлектрическая проницаемость.

Результаты и их обсуждение

Зависимости приведенного к максимальному значению электретного потенциала от времени для разных образцов керамики ЦТСЛ-9/65/35 при температуре 18 °С показаны на рис. 2.

Погрешность при измерении потенциала составляла примерно 10 %. Анализ кривых на рис. 2 показал, что невозможно описать эти зависимости кинетикой первого порядка с одним временем релаксации. Мы связываем такой характер зависимостей с релаксацией заряда за счет многократных

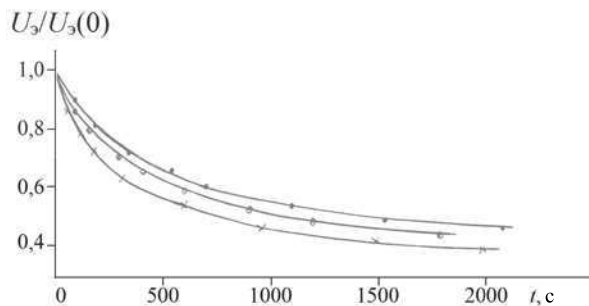


Рис. 2. Зависимости электретной разности потенциалов от времени релаксации для трех образцов керамики при температуре 18 °С.
 $U_s(0) \approx 200$ В

захватов и освобождений носителей заряда из ловушек при их движении через объем керамики. Предполагается, что ловушки имеют широкий энергетический спектр.

Зависимости $U_s(t)$ были проанализированы на основе модели дисперсионного транспорта. Модель релаксации предполагает дрейф избыточных носителей заряда, в данном случае электронов, от поверхности к заземленному металлическому электроду в созданном ими электрическом поле. При этом считается, что собственная проводимость керамики много меньше проводимости, обусловленной дисперсионным транспортом, и постоянная времени Максвелла $\tau_M = \varepsilon\varepsilon_0/\gamma$ (γ – удельная электропроводность керамики) много больше постоянных времени релаксации заряда. Измеренное нами значение γ при температуре 18 °С оказалось равным $5 \cdot 10^{-12}$ Ом $^{-1}$ ·м $^{-1}$. Из рис. 1 следует, что при этой температуре $\varepsilon = 5 \cdot 10^3$. Таким образом, $\tau_M = 10^4$ с, что во много раз превышает время релаксации заряда при данной температуре. Процесс релаксации заряда в условиях открытой цепи описывается системой из двух уравнений:

$$\begin{aligned} j &= \mu\rho E + \varepsilon_0\varepsilon \frac{\partial E}{\partial t} = 0; \\ \frac{\partial E}{\partial x} &= \frac{\rho}{\varepsilon_0\varepsilon}, \end{aligned} \quad (1)$$

где j – плотность тока разрядки; ρ – плотность объемного заряда; ε – относительная диэлектрическая проницаемость; μ – эффективная подвижность носителей заряда; E – напряженность электрического поля.

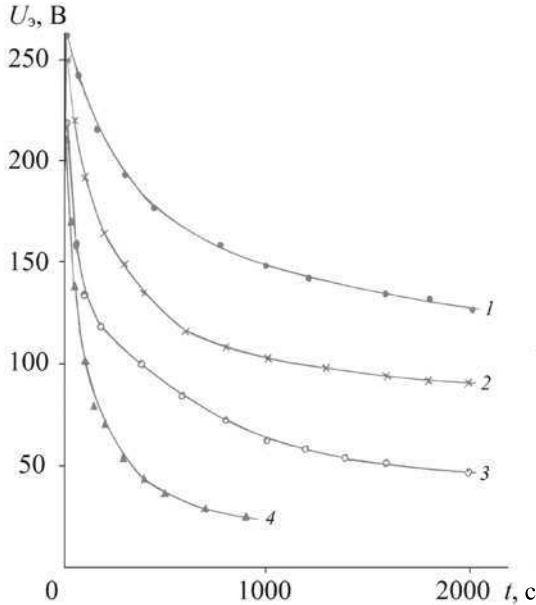


Рис. 3. Зависимость электретной разности потенциалов от времени релаксации для четырех температур
 $T, ^\circ\text{C}$: 18(1), 30(2), 40(3), 50(4)

Исключив ρ из системы (1), получаем следующее уравнение:

$$\mu E \frac{\partial E}{\partial x} = \frac{\partial E}{\partial t}. \quad (2)$$

После интегрирования этого уравнения по координате x от $x = 0$ до $x = h$ получаем следующее выражение:

$$\mu(t) = \frac{2}{E_h^2 - E_0^2} \cdot \frac{dU_3}{dt}. \quad (3)$$

Во время разрядки в условиях открытой цепи напряженность электрического поля $E_0 = 0$, и E_h можно определить из формулы

$$E_h = Q/\epsilon_0\epsilon, \quad (4)$$

где Q — плотность поверхностного заряда.

В начальный момент, когда весь заряд сконцентрирован в тонком поверхностном слое, мы имеем равенство

$$U_3(0) = Q_0 h / \epsilon_0 \epsilon = E_h h. \quad (5)$$

Подставляя $E_0 = 0$ и $E_h = U_3(0)/h$ в (3), получаем выражение для $\mu(t)$:

$$\mu(t) = \frac{2h^2}{U_3^2(0)} \cdot \frac{dU_3(t)}{dt} \quad (6)$$

для $t \leq t_0$, которое позволяет определить зависимость $\mu(t)$ при указанных значениях времени релаксации.

Можно рассчитать $\mu(t)$ из формулы (6) в интервале времени от 0 до $t = t_0$, пока передний фронт зарядного облака движется от свободной поверхности керамики до нижнего электрода. В момент $t = t_0$ фронт зарядного облака достигнет нижнего электрода.

Мы полагаем, что в момент $t = t_0$ заряд Q_0 равномерно распределится в объеме образца, и тогда

$$U_3(t_0) = U_3(0)/2, \quad E_h(t) = Q(t)/\epsilon_0\epsilon;$$

$$U_3(t) = E_h(t) \cdot (h/2)$$

для $t \geq t_0$.

Из равенства (3) получаем следующее выражение:

$$\mu(t) = \frac{h^2}{2U_3^2(t)} \cdot \frac{dU_3(t)}{dt} \quad (7)$$

для $t \geq t_0$.

Таким образом, зависимость подвижности носителей заряда от времени может быть найдена из выражений (6) и (7) на основе модели дисперсионного транспорта. Время t_0 соответствует моменту, когда $U_3(t) = U_3(0)/2$ [7]. Формулы (6) и (7) хорошо согласуются с выражениями для μ , по-

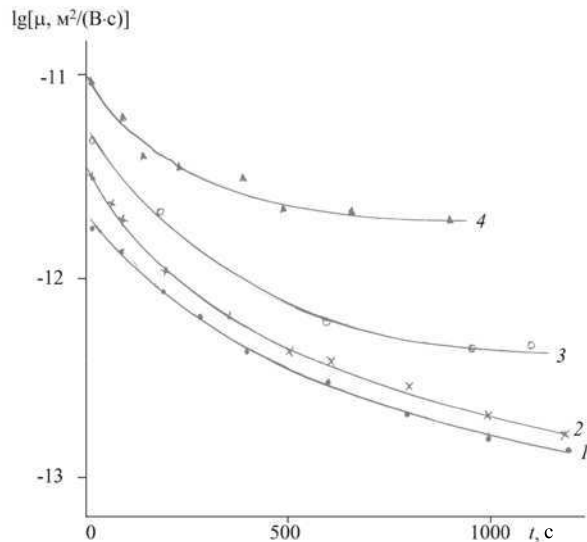


Рис. 4. Зависимость эффективной подвижности носителей заряда (электронов) в керамике от времени для четырех температур
 $T, ^\circ\text{C}$: 18(1), 30(2), 40(3), 50(4)

лученными на основе теории дисперсионного транспорта [7, 8].

Чтобы изучить влияние температуры на процесс релаксации, проводились измерения зависимости электретоного потенциала от времени при четырех значениях температуры (рис. 3). Кроме того, для больших значений величины t дополнительные измерения были проведены при температуре $T = 85^\circ\text{C}$.

Зависимость эффективной подвижности носителей заряда от времени для четырех значений температуры, рассчитанная из экспериментальных данных с помощью формул (6), (7), показана на рис. 4. Видно, что подвижность уменьшается со временем на один-два порядка в зависимости от значения температуры. Такой характер зависимости соответствует теории дисперсионного транспорта [7, 8]. С ростом температуры эффективная подвижность носителей заряда увеличивается.

Приведенная на рис. 5 зависимость $\lg(\mu)$ от обратной температуры $5040/T$ позволяет определить энергию активации W_a для ловушек, вносящих основной вклад в транспорт носителей заряда. Расчет дает величину $W_a = 0,5$ эВ независимо от времени релаксации заряда.

Таким образом, в работе было изучено снижение поверхностного потенциала керамики ЦТСЛ-9, заряженной в отрицательной короне, с течением времени в изотермиче-

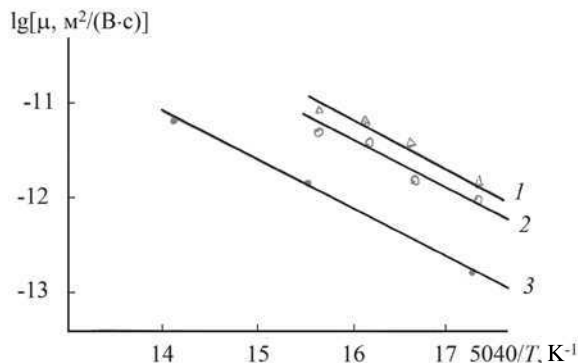


Рис. 5. Зависимость подвижности электронов в керамике от температуры для различных времен релаксации избыточного заряда t , с: 50(1), 100(2), 900(3)

ском режиме, при значениях температуры в интервале от 18 до 85°C . Полученные данные были проанализированы на основе модели дисперсионного транспорта в предположении, что собственная проводимость керамики меньше, чем проводимость, обусловленная дрейфом носителей заряда. Из полученных экспериментальных результатов рассчитана зависимость эффективной подвижности носителей заряда от времени. Установившееся значение подвижности при $T = 18^\circ\text{C}$ составляет приблизительно $10^{-13} \text{ м}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ и растет с повышением температуры.

Показано, что стабильность заряда существенно зависит от температуры и при ее повышении от 18 до 30°C электретоный потенциал уменьшается примерно в два раза.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Алексеев, В.Н. Двухкоординатное управление диаграммой направленности химического нецепного электроразрядного DF-лазера с помощью пространственно-временных модуляторов света [Текст] / В.Н. Алексеев, В.Н. Костылев, В.Н. Либер // Квантовая электроника. — 2008. — Т. 38. — № 7. — С. 670–672.
2. Богомолов, А.А. Инициирование поляризованного состояния в релаксорной керамике ЦТСЛ-10 [Текст] / А.А. Богомолов, А.В. Солнышкин, А.Ю. Лазарев [и др.] // Известия вузов. Материалы электронной техники. — 2008. — № 2. — С. 57–60.
3. Bogomolov, A.A. Polarization of surface layers in PLZT relaxor ceramics [Text] / A.A. Bogomolov, A.V. Solnyshkin, A.Yu. Lazarev [et al.] // Ferroelectrics. — 2008. — Vol. 374. — P. 1–6.
4. Димза, В.И. Физические явления в сегнетоэлектриках [Текст] / В.И. Димза. — Рига: Изд-во ЛГУ им. П. Стучки, 1979. — 107 с.
5. Солнышкин, А.В. Пироэлектрический и фотовольтаический эффекты в неоднородных сегнетоэлектрических структурах [Текст] / А.В. Солнышкин // Автореферат дис. ... докт. физ.-мат. наук: 01.04.07. — Тверь: Изд-во Тверского гос. ун-та, 2012. — 34 с.
6. Яффе, Б. Пьезоэлектрическая керамика [Текст] / Б. Яффе, У. Кук, Г. Яффе; Пер. с англ. — М.: Мир, 1974. — 287 с.
7. Электреты [Текст]: Коллективная монография; Пер. с англ. под ред. Г. Сесслера. — М.: Мир, 1983. — 487 с.
8. Архипов, В.И. Релаксация электретоного состояния вещества в режиме дисперсионного



транспорта [Текст] / В.И. Архипов, А.И. Руденко, Д.В. Храмченков // Физика и техника полупроводников. — 1987. — Т. 21 — № 12. — С. 2121–2124.

9. Vance, D.W. Surface charging of insulators by ion irradiation [Text]/ D.W. Vance // J. Appl. Phys. — 1971. — Vol. 42. — № 13. — P. 5430–5443.

REFERENCES

1. Alekseev V.N., Kostylev V.N., Liber V.N. Dvukhkoordinatnoe upravlenie diagrammoi napravlenosti khimicheskogo netsepnogo elektrorazriadnogo DF-lazera s pomoshch'iu prostanstvenno-vremennykh modulatorov sveta. Kvantovaya elektronika. — 2008. — Т. 38. — № 7. — С. 670–672. (rus)

2. Bogomolov A.A., Solnyshkin A.V., Lazarev A.Yu., Kiselev D.A., Kholkin A.L. Initsirovanie polarizovannogo sostoiianiia v relaksornoj keramike TsTSL-10. Izvestiia vuzov. Materialy elektronnoi tekhniki. — 2008. — № 2. — С. 57–60. (rus)

3. Bogomolov A.A., Solnyshkin A.V., Lazarev A.Yu., Kiselev D.A., Kholkin A.L. Polarization of surface layers in PLZT relaxor ceramics. Ferroelectrics. — 2008. — Vol. 374. — P. 1–6.

4. Dimza V.I. Fizicheskie iavleniia v segnetoelektrikakh. — Riga: Izd-vo LGU im. P. Stuchki,

1979. — 107 s. (rus)

5. Solnyshkin A.V. Piroelektricheskii i fotovol'taicheskii efekty v neodnorodnykh segnetoelektricheskikh strukturakh. Diss. kand. fiz.-mat. nauk. — Tver': Izd-vo Tverskogo gos. un-ta, 2012. — 34 s. (rus)

6. Iaffe B., Kuk U., Iaffe G. P'ezoelektricheskaiia keramika. — Moscow: Mir, 1974. — 287 s. (rus)

7. Elektrety: Kollektivnaia monografiia. — Moscow: Mir, 1983. — 487 s. (rus)

8. Arkhipov V.I., Rudenko A.I., Khranchenkov D.V. Relaksatsiia elektretnogo sostoiianiia veshchestva v rezhime dispersionnogo transporta. Fizika i tekhnika poluprovodnikov. — 1987. — Т. 21. — № 12. — С. 2121–2124. (rus)

9. Vance D.W. Surface charging of insulators by ion irradiation. J. Appl. Phys, 1971. — Vol. 42. — № 13. — P. 5430–5443. (rus)

БОРИСОВ Владимир Леонидович — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физической электроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул. 29.
vladimirl.borisov@gmail.com

БОРИСОВА Маргарита Эдуардовна — доктор технических наук, профессор кафедры техники высоких напряжений, электроизоляционной и кабельной техники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
vladimirl.borisov@gmail.com

УДК 535.564

А.-В.В. Цакаев, В.П. Кочерешко

ЭФФЕКТЫ ПРОСТРАНСТВЕННОЙ ДИСПЕРСИИ ЭКСИТОНОВ В КВАНТОВЫХ ЯМАХ СЕЛЕНИДА ЦИНКА

A.-V.V. Tsakaev¹, V.P. Kochereshko^{1,2}

¹St. Petersburg State University,
7 – 9 Universitetskaya Emb., St. Petersburg, 199034, Russia.

²A.F. Ioffe Physical-Technical Institute,
26 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 194021, Russia

EFFECTS OF EXITON SPATIAL DISPERSION IN ZINC SELENIDE QUANTUM WELLS

В данной работе по спектрам наклонного отражения света обнаружено и исследовано явление естественной оптической активности в гетероструктуре с одиночной квантовой ямой ZnSe/ZnSSeMg.

ГИРОТРОПИЯ, ЕСТЕСТВЕННАЯ ОПТИЧЕСКАЯ АКТИВНОСТЬ, ПРОСТРАНСТВЕННАЯ ДИСПЕРСИЯ.

The phenomenon of the natural optical activity has been found and studied in ZnSe/ZnSSeMg single quantum well using reflectivity spectra at oblique light incidence.

GYROTROPY, NATURAL OPTICAL ACTIVITY, SPATIAL DISPERSION.

Гиротропией называют явление поворота плоскости поляризации линейно-поляризованного света при его прохождении через кристалл, причем знак поворота меняется при изменении направления распространения на противоположное [1–4]. Не все кристаллы являются гиротропными, в частности, таковыми не являются кубические кристаллы с симметрией T_d [1]. Однако в неоднородной негиротропной среде гиротропия может неожиданно проявиться. Простейшим примером неоднородной среды является полубесконечная среда, например гетеропереход. В полубесконечной среде, даже составленной из изотропных сред, возможно проявление гиротропии. Причина этого состоит в том, что полубесконечная среда не может иметь центра инверсии. Появление гиротропии в оптически однородной, изотропной, полубесконечной среде аналогично появлению линейного по волновому вектору расщеплению зоны про-

водимости вблизи гетероперехода, предсказанному Рашбой [5]. Эффект Рашбы для электронов подробно изучался в полупроводниках. Однако для света подобные эффекты до сих пор не наблюдались.

Структура ZnSe. Многие полупроводниковые соединения классов $A^{III}B^V$ и $A^{II}B^{VI}$ имеют структуру цинковой обманки (класс T_d). К таким соединениям относится и селенид цинка ZnSe. Данная структура представляет собой гранецентрированную кубическую решетку с базисом из двух атомов разного сорта, сдвинутых друг относительно друга на четверть пространственной диагонали куба. Если в структуре заменить все атомы на одинаковые, то будет получена структура алмаза, характерная для кремния и германия.

Структура обладает полной симметрией тетраэдра, которая включает следующие элементы:

четыре оси третьего порядка C_3 (про-



пространственные диагонали куба);

шесть плоскостей отражения (в каждой плоскости лежат две оси C_3);

три оси второго порядка C_2 (проходят через центр куба параллельно ребрам);

три зеркально-поворотных оси S_4 (совпадают с C_2);

Важной особенностью, которая отличает симметрию тетраэдра T_d от полной симметрии куба O_h , является отсутствие в тетраэдре центра инверсии. Благодаря этому в структуре цинковой обманки разрешены эффекты, описываемые тензорами третьего ранга, в том числе любые эффекты зависимости тензора диэлектрической проницаемости от волнового вектора света (пространственная дисперсия) или от напряженности постоянного электрического поля (электрооптический эффект Поккельса).

Гиротропные и негиротропные среды. Из симметрии тензора диэлектрической проницаемости по отношению к обращению времени следует равенство:

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega) = \varepsilon_{ji}(-\mathbf{k}, \omega). \quad (1)$$

Это условие означает, что при изменении направления движения всех частиц на обратное они будут двигаться в обратном направлении по своим прежним траекториям.

В зависимости от конкретных свойств пространственной симметрии среды, могут встретиться два случая.

1. В среде имеется центр симметрии. В этом случае направления $\mathbf{k}$ и $-\mathbf{k}$ эквивалентны, т. е. для всех $\mathbf{k}$ и ω справедливо равенство:

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega) = \varepsilon_{ij}(-\mathbf{k}, \omega). \quad (2)$$

Соотношения симметрии (1) и (2) в этом случае означают, что тензор $\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega)$ является симметричным по индексам i и j для любых $\mathbf{k}$ и ω :

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega) = \varepsilon_{ji}(\mathbf{k}, \omega).$$

Такая среда называется негиротропной.

2. В среде имеется хотя бы одно направление, неэквивалентное противоположному направлению, тогда соотношение (2) не выполняется:

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega) \neq \varepsilon_{ij}(-\mathbf{k}, \omega). \quad (3)$$

Вместе с соотношениями симметрии (1) это означает, что в такой среде тензор $\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega)$ будет несимметричным:

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega) \neq \varepsilon_{ji}(\mathbf{k}, \omega).$$

Среда в этом случае называется гиротропной.

Согласно неравенству (3), гиротропной может быть только среда без центра симметрии. Обратное утверждение, вообще говоря, неверно: не всякая среда без центра симметрии является гиротропной, так как соотношение (2) может выполняться ввиду наличия других элементов симметрии.

При отсутствии пространственной дисперсии симметричность тензора диэлектрической проницаемости автоматически следует из соотношений симметрии (1), и такая среда всегда негиротропна. Другими словами, гиротропией могут обладать лишь среды с пространственной дисперсией.

Естественная оптическая активность. Величина пространственной дисперсии определяется отношением характерного радиуса межатомного взаимодействия a (a – порядка постоянной решетки) и длины волны излучения λ . Данное отношение в оптическом диапазоне мало (порядка $10^{-2} - 10^{-3}$), что говорит о малости влияния пространственной дисперсии на оптические свойства среды по сравнению с частотной дисперсией. В этом случае в разложении тензора $\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega)$ по степеням волнового вектора можно ограничиться лишь линейными членами:

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega) = \varepsilon_{ij}^0(\omega) + i\gamma_{ijl}k_l,$$

где $\varepsilon_{ij}^0(\omega) = \varepsilon_{ij}^0(0, \omega)$; γ_{ijl} – некоторый тензор третьего ранга, зависящий от частоты.

Из соотношения симметрии (1) следует, что тензор γ_{ijl} антисимметричен по первым двум индексам:

$$\gamma_{ijl}(\omega) = -\gamma_{jil}(\omega).$$

Мы будем рассматривать именно этот случай малой пространственной дисперсии, линейной по волновому вектору. Из-за своей малости пространственная дисперсия представляет интерес в первую очередь в тех случаях, когда ее наличие приводит к качественно новым явлениям.

Рассмотрим для простоты случай изо-

тропной среды, или кубического кристалла. В этих случаях справедливы равенства:

$$\varepsilon_{ij}(\omega) = \varepsilon(\omega)\delta_{ij}; \quad \gamma_{ijl}(\omega) = \gamma(\omega)e_{ijl},$$

где e_{ijl} — единичный, полностью антисимметричный тензор (тензор Леви — Чивита).

Для тензора $\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega)$ тогда имеем равенство

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega) = \varepsilon(\omega)\delta_{ij} + i\gamma(\omega)e_{ijl}k_l.$$

Для наглядности выпишем компоненты тензора $\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega)$ в системе координат с осью z , направленной вдоль вектора $\mathbf{k}$:

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega) = \begin{pmatrix} \varepsilon & i\gamma k & 0 \\ -i\gamma k & \varepsilon & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon \end{pmatrix}.$$

Такая структура тензора диэлектрической проницаемости характерна именно для гиротропной среды и проявляется в определенных эффектах, специфичных для таких сред.

Постановка задачи

В объемном кубическом кристалле симметрии T_d тензор диэлектрической проницаемости диагонален:

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{k}, \omega) = \begin{pmatrix} \varepsilon & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon \end{pmatrix},$$

т. е. в кристаллах симметрии T_d гиротропия отсутствует.

В квантовой яме симметрия понижена до D_{2d} , и в этом случае тензор диэлектрической проницаемости имеет вид:

$$\hat{\varepsilon}_{ij}(\mathbf{k}, \omega) = \hat{\varepsilon}(\omega) + \gamma \begin{pmatrix} 0 & 0 & ik_y \\ 0 & 0 & ik_x \\ -ik_y & -ik_x & 0 \end{pmatrix}; \quad (4)$$

$$\hat{\varepsilon}(\omega) = \begin{pmatrix} \varepsilon_{\perp}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{\perp}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z(\omega) \end{pmatrix}.$$

Таким образом, в структуре с квантовой ямой можно наблюдать явление гиротропии. Как видно из выражения (4), гиротропия будет проявляться как смешивание поперечных и продольных электромагнитных волн. Следовательно, это явление можно

наблюдать только при наклонном падении света. Экситон, благодаря его резонансному вкладу в диэлектрическую проницаемость, позволяет значительно усилить наблюдаемое явление. Возникновение гиротропии в квантовых ямах недавно было предсказано теоретически [6].

Эксперимент

Были исследованы спектры отражения от гетероструктуры с квантовой ямой ZnSe/ZnSSeMg шириной 10 нм, выращенной в направлении (100). Образцы были изготовлены методом молекулярно-лучевой эпитаксии.

Спектры отражения регистрировались при наклонном падении света, под углами от 30 до 60 град в S - и P -поляризациях (в S -поляризации вектор поляризации перпендикулярен к плоскости падения, т. е. плоскости, проходящей через луч и нормаль к поверхности; в P -поляризации вектор поляризации лежит в плоскости падения). Угол падения контролировался с точностью до 0,5 град. Особое внимание уделялось расходимости пучков. С помощью диафрагм все пучки коллимировались до диаметра 5 мм. В результате расходимость падающего и отраженного пучков не превышала 0,5 град. Схема установки для исследования спектров наклонного отражения приведена на рис. 1.

Пучок света от источника И1, пройдя через линзы Л1 и Л2 и диафрагму-щель 9, попадает в криостат 1, где отражается от образца, и через систему линз Л3 и Л4 фокусируется на входной щели монохроматора 2 (Bx).

Двойной монохроматор 2 (ДФС-24), работающий в диапазоне 400–850 нм, выделяет из светового пучка излучение с определенной длиной волны. Использование двух дифракционных решеток позволяет увеличить дисперсию и сократить количество проходящего через систему рассеянного света.

Ширина щелей монохроматора выбирается таким образом, чтобы спектральная ширина выходного пучка составляла примерно 0,1 нм, с таким же шагом по длине волны снимается спектр.

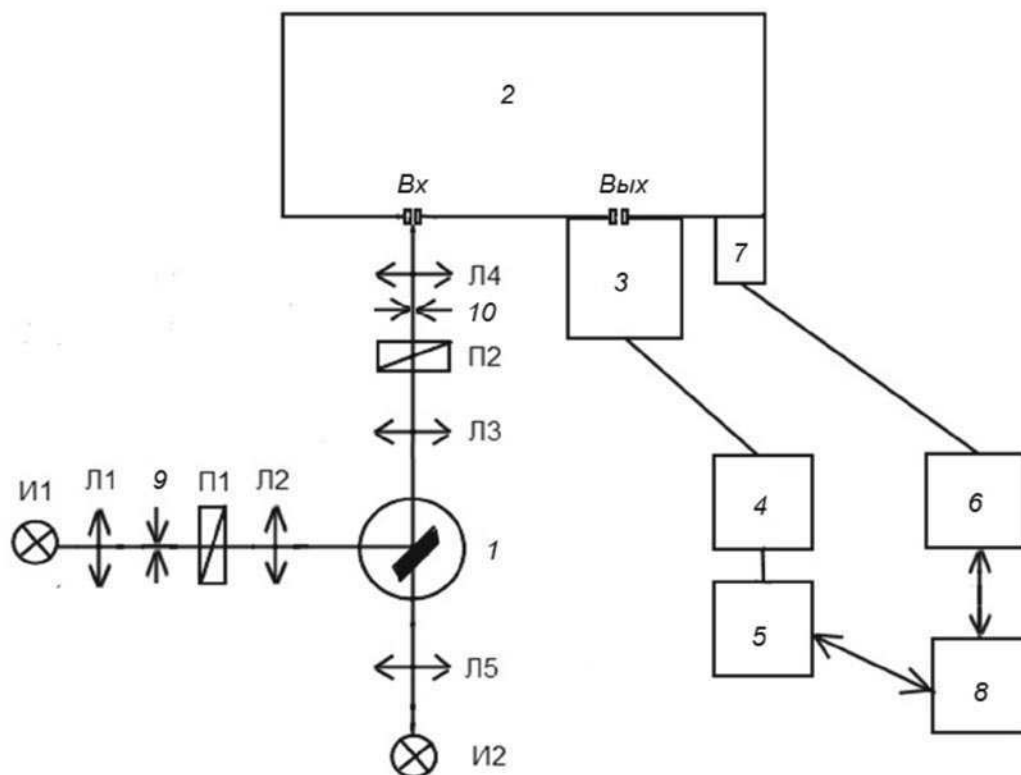


Рис. 1. Схема экспериментальной установки:

1 – оптический криостат с образцом; 2 – монохроматор (V_x , V_{yx} – входная и выходная щели);
 3 – фотоэлектронный умножитель; 4 – усилитель, формирователь импульсов; 5 – счетчик импульсов;
 6 – блок управления шаговым двигателем; 7 – шаговый двигатель, синхронно поворачивающий обе дифракционные решетки; 8 – компьютер; 9, 10 – диафрагмы; И1, И2 – лампы накаливания; Л1 – Л5 – линзы;
 П1, П2 – линейные пленочные поляризаторы

Перемотка спектра осуществляется с помощью управляемого компьютером униполярного шагового двигателя, вращающего дифракционные решетки относительно общего центра.

12-каскадный Sb-K-Na-Cs фотоэлектронный умножитель ФЭУ-79 (3) преобразует вышедший из монохроматора свет в импульсный электрический сигнал, который после усиления поступает на счетчик импульсов 5, соединенный с компьютером.

Для корректной работы ФЭУ (один электрический импульс на один входящий фотон) необходимо ограничивать падающий световой поток: требуется, чтобы среднее время между приходом двух фотонов было много больше длительности импульса (времени нарастания лавины, т. е. порядка десятков наносекунд). Достаточным является ограничение порядка 10^5 фотон/с.

Ограничение светового потока достигается с помощью регулирования ширины щели V_x , а также диафрагм на линзах Л2 и Л4.

Лампа И2 и линза Л5 служат для юстировки оптической оси и во время снятия спектра не используются.

Все линзы расположены относительно соответствующих источников на двойном фокусном расстоянии; таким образом изображение спирали лампы И1 проецируется в натуральную величину и на образце, и на входной щели монохроматора.

Спектры отражения исследуемых структур снимались при наклонном падении в условиях, когда на образец падал свет, линейно поляризованный точно в S - или P -поляризациях, а сигнал регистрировался либо в той же, либо в ортогональной поляризации.

Результаты и обсуждение

На рис. 2, *а* представлен спектр отражения (кривая 1), снятый при угле падения 45 град, в параллельных поляризаторах, в *P*-поляризации, перпендикулярной кристаллографическому направлению (100), при $T = 77$ К. В спектре видны две яркие линии отражения на длинах волн 438,5 нм и 441,0 нм. Эти линии связаны с возбуждением тяжелого и легкого экситонов в квантовой яме, соответственно. Интенсивности этих линий относятся как 1 : 3, в соответствии с нормировкой волновых функций для тяжелой и легкой дырок.

Кривая 2 на рис. 2, *а* представляет спектр отражения, снятый в скрещенных поляризаторах. Падающий пучок был линейно поляризован в *P*-поляризации, а анализировался свет в *S*-поляризации. Как видно из рисунка, энергетическое положение линий тяжелого и легкого экситонов осталось прежним, однако форма контура отражения и соотношение интенсивностей линий заметно изменились. Теперь вместо «дифференциального» контура отражения в спектре наблюдается «максимум» как для тяжелого, так и для легкого экситонов. Амплитуды линий стали почти одинаковыми.

На рис. 2, *б* представлены аналогичные спектры для того же образца, повер-

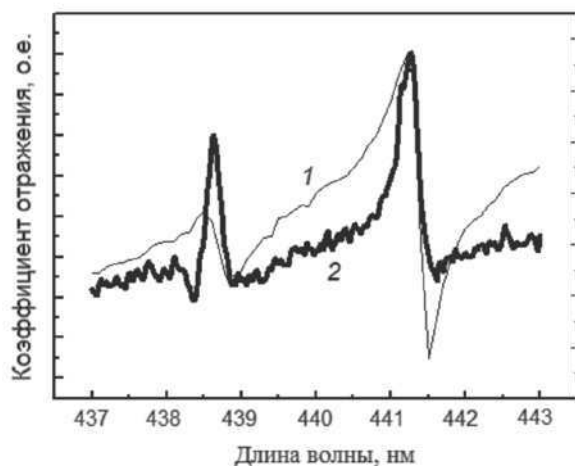
нутого вокруг оси роста на 90 град. В этом случае падающий пучок был поляризован вдоль кристаллографического направления (010). Энергетическое положение всех линий осталось таким же, как на рис. 2, *а*. Форма линии отражения тяжелого экситона также осталась прежней, но контур отражения легкого экситона «перевернулся». Линия отражения легкого экситона вместо «максимума» превратилась в «минимум». Отношение амплитуд линий легкого и тяжелого экситонов осталось таким же, как на спектре, приведенном на рис. 2, *а*.

Если падающий на образец свет был линейно поляризован точно в *S*- или *P*-поляризации, а регистрировался сигнал в ортогональной поляризации, то для изотропной среды отраженный сигнал должен отсутствовать. Линейно-поляризованный свет может проходить через систему скрещенных поляризаторов, ориентированных вдоль *S*- или *P*-осей только благодаря двум причинам:

во-первых, – двулучепреломлению, т. е. преобразованию линейной поляризации света в круговую (или в общем случае в эллиптическую);

во-вторых, – гиротропии, т. е. повороту плоскости поляризации плоскополяризованного света.

а)



б)

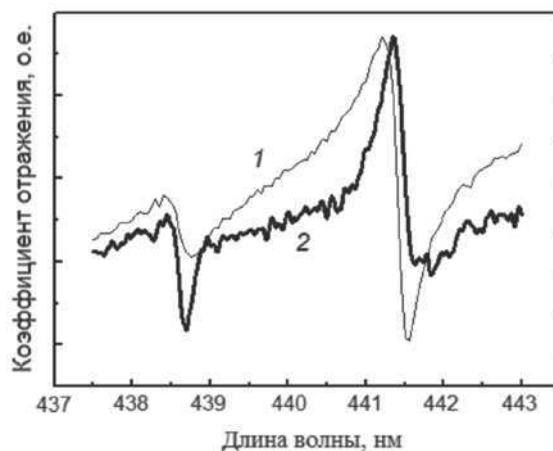


Рис. 2. Спектры отражения света, полученные при угле падения 45 град, в параллельных (кривые 1) и в скрещенных (кривые 2) поляризаторах от квантовой ямы ZnSe/ZnSSeMg при $T = 77$ К. Падающий свет поляризован либо вдоль кристаллографического направления (100) (*а*), либо вдоль (010) (*б*)



Для гетероструктуры с квантовой ямой на основе $\text{ZnSe}/\text{ZnSSeMg}$ могут иметь место оба эти случая.

Явление двулучепреломления в структурах с квантовыми ямами подробно исследовалось в серии работ [7, 8]. Было показано, что это явление вызвано понижением симметрий интерфейсов по сравнению с объемом из-за преимущественного направления химических связей на интерфейсе вдоль направлений (110) или (1–10). Таким образом, благодаря анизотропии интерфейсов структура с квантовой ямой представляет собой одноосную диэлектрическую среду с оптической осью вдоль направления (110) или (1–10).

Такая оптическая анизотропия, связанная с направлением химических связей, не носит резонансного характера и имеет место в очень широкой области спектра [9]. Если на такую среду падает световой пучок, линейно поляризованный вдоль осей (100) или (010), то отраженный пучок должен быть поляризован эллиптически с циркулярной компонентой, поляризованной по правому или левому кругу соответственно. В этом случае в скрещенных поляризаторах появится сигнал, интенсивность которого будет одинаковой вне зависимости от направления поляризации падающего света – вдоль оси (100) или вдоль оси (010). Различие может касаться только фазы отраженного света. Она, очевидно, меняет знак для правой ($X + iY$) и левой ($X - iY$) циркулярных поляризаций.

При наличии гиротропии отраженный линейно-поляризованный свет также приобретает круговую поляризацию. Однако в этом случае, согласно формулам (4), знак поляризации не зависит от поворота образца, а полностью определяется направлением волнового вектора: вдоль какой-либо из осей или в противоположном направлении.

Наличие гиротропии связано с зонной структурой исследуемого кристалла, а именно с отсутствием у него центра инверсии и появлением линейных по волновому вектору слагаемых в дисперсии экситона, в результате чего гиротропия носит резонансный характер.

Таким образом, наблюдаемый нами в скрещенных поляризаторах сигнал обусловлен как двулучепреломлением, так и естественной оптической активностью. Эти два сигнала, будучи когерентными, интерферируют между собой. В результате такой интерференции они либо складываются, как это видно из рис. 2, а, либо вычитаются (рис. 2, б).

Почти во всех учебниках по оптике сказано, что в квантовой яме гиротропии быть не может. Более того, это утверждение является отличительным свойством гиротропии от других оптических явлений. В объемном кубическом кристалле симметрии T_d гиротропия также отсутствует. Однако если изготовить квантовую яму на основе кубического полупроводника, то оказывается, что гиротропию можно наблюдать.

В данной работе впервые экспериментально наблюдалось явление гиротропии в структуре с квантовой ямой на основе полупроводника ZnSe . Это явление связано со смешиванием поперечного и продольного состояний экситона, поэтому его можно наблюдать только при наклонном падении света. Из полученных экспериментально спектров можно определить значение компонент тензора диэлектрической проницаемости, ответственных за это явление.

Работа получила частичную финансовую поддержку грантов РФФИ №11-02-00547-а, Программы отделения физических наук РАН, гранта СПбГУ № 11.37.646.2013 и гранта Минобрнауки РФ № 11.G34.31.0067.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Агранович, В.М. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов [Текст] / В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. – М.: Наука, 1965. – 376 с.
2. Памятных, Е.А. Основы электродинамики материальных сред в переменных и неоднородных полях [Текст] / Е.А. Памятных,

Е.А. Туров. – М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит-ры, 2000. – 240 с.

3. Борн, М. Основы оптики [Текст] / М. Борн, Э. Вольф. – М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит-ры, 1973. – 713 с.

4. Ландау, Л.Д. Теоретическая физика [Текст]: в 10 тт. Т. 8. Электродинамика сплошных сред /

Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. — М.: Наука, 1982. — Т. 8. — 624 с.

5. **Bychkov, Yu.A.** Effect of k -linear terms on electronic properties of 2D systems [Text] / Yu.A. Bychkov, I.E. Rashba // Proc. 17th Int. Conf. on the Physics of Semiconductors. San Francisco, CA, USA, 1984. 08.06. — Ed. by J.D. Chadi, W.A. Harrison. Springer-Verlag, 1984. — P. 321–324.

6. **Golub, L.E.** Gyrotropy and magneto-spatial dispersion effects at intersubband transitions in quantum wells [Text] / L.E. Golub // Europhys. Lett. — 2012. — Vol. 98. — № 5. — 54005 p.

7. **Гуревич, А.С.** Анизотропия оптических констант гетероструктур ZnSe/BeTe без общего атома на интерфейсах [Текст] / А.С. Гуревич,

В.П. Кочерешко, А.В. Платонов [и др.] // Физика твердого тела. — 2004. — Т. 46. — Вып. 4. — С. 759–766.

8. **Kochereshko, V.P.** Optical anisotropy of cubic crystals, from bulk to quantum dots [Text] / V.P. Kochereshko, A.V. Platonov, A.S. Gurevich // Journal of Luminescence. — 2007. — Vol. 125. — № 1-2. — P. 133–146.

9. **Platonov, A.V.** Elliptically polarized luminescence of spin-oriented carriers recombining at anisotropic type-II interface in ZnSe/BeTe quantum wells [Text] / A.V. Platonov, D.R. Yakovlev, W. Ossau, V.P. Kochereshko [et al.] // Phys. Status Solidi. B. — 2002. — Vol. 229. — № 2. — P. 689–694.

REFERENCES

1. **Agranovich V.M., Ginzburg V.L.** Kristallooptika s uchetom prostranstvennoi dispersii i teorii eksitonov. — Moscow: Nauka, 1965. — 376 s. (rus)

2. **Pamiatnykh E.A., Turov E.A.** Osnovy elektrodinamiki material'nykh sred v peremennykh i neodnorodnykh poliakh. — Moscow: Nauka. — 240 s. (rus)

3. **Born M., Vol'f E.** Osnovy optiki. — Moscow: Nauka, 1973. — 713 s. (rus)

4. **Landau L.D., Lifshitz E.M.** Theoretical physics. Electrodynamics of Continuous Media. — Moscow: Nauka, 1982. — Т. 8. — 624 s. (rus)

5. **Bychkov Yu.A., Rashba I.E.** Effect of k -linear terms on electronic properties of 2D systems. Proc. 17th Int. Conf. on the Physics of Semiconductors. San Francisco, CA, USA, 1984. 08.06. Ed. by J.D. Chadi, W.A. Harrison. — Springer-Verlag, 1984. — P. 321–324.

6. **Golub L.E.** Gyrotropy and magneto-spatial dispersion effects at intersubband transitions in quantum wells. Europhys. Lett. — 2012. — Vol. 98. — № 5. — 54005 p.

7. **Gurevich A.S., Kochereshko V.P., Platonov A.V.** Anizotropiia opticheskikh konstant geterostuktur ZnSeBeTe bez obshchego atoma na interfeisakh. Solid State Physics. — 2004. — Т. 46. — № 4. — S. 759–766. (rus)

8. **Kochereshko V.P., Platonov A.V., Gurevich A.S. et al.** Optical anisotropy of cubic crystals, from bulk to quantum dots. Journal of Luminescence. — 2007. — Vol. 125. — № 1-2. — P. 133–146.

9. **Platonov A.V., Yakovlev D.R., Ossau W., Kochereshko V.P. et al.** Elliptically polarized luminescence of spin-oriented carriers recombining at anisotropic type-II interface in ZnSeBeTe quantum wells. Phys. Status Solidi. B. — 2002. — Vol. 229. — № 2. — P. 689–694.

КОЧЕРЕШКО Владимир Петрович — доктор физико-математических наук, руководитель группы магнитооптики полупроводниковых наноструктур в лаборатории Каплянского ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН. 194021, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26
Vladimir.Kochereshko@mail.ioffe.ru.

ЦАКАЕВ Абдул-Вахаб Валидович — студент физического факультета Санкт-Петербургского государственного университета. 199034, г. Санкт-Петербург, Университетская наб., 7–9
abdul-vahab91@mail.ru



УДК 534.2, 534-18.

В.П. Пащенко

УПРАВЛЯЕМЫЙ ФОНОННЫЙ КРИСТАЛЛ НА ПОВЕРХНОСТНЫХ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛНАХ НА ОСНОВЕ ИНДУЦИРОВАННЫХ ПЕРИОДИЧЕСКИХ ДОМЕННЫХ СТРУКТУР

V.P. Pashchenko

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia

CONTROLLED SURFACE ACOUSTIC WAVE PHONONIC CRYSTAL BASED ON INDUCED PERIODIC DOMAINS

Предложен новый тип фононного кристалла, управляемого путем индуцирования внешним постоянным электрическим полем периодических доменных структур в тонкой сегнетоэлектрической пленке. Представлены результаты конечно-элементного моделирования частотной зависимости коэффициента прохождения, а также дисперсионные кривые для первой зоны Бриллюэна. Показано изменение ширины запрещенной зоны этого фононного кристалла при изменении электрического поля, индуцирующего пьезоэлектрические периодические доменные структуры в сегнетоэлектрической пленке.

УПРАВЛЯЕМЫЙ ФОНОННЫЙ КРИСТАЛЛ, НАВЕДЕННЫЙ ПЬЕЗОЭФФЕКТ, ПОВЕРХНОСТНЫЕ АКУСТИЧЕСКИЕ ВОЛНЫ, ПЕРИОДИЧЕСКИЕ ДОМЕНЫ, СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ПЛЕНКА.

A novel type of controllable phononic crystal controlled by external static electric field that induced periodic domains in ferroelectric thin film has been proposed. Finite element simulation results of frequency dependent of transmission coefficient and dispersion curves at first Brillouin zone are presented. The change of phononic band gap width via changing the electric field which induced the periodic domains in ferroelectric thin film was shown.

CONTROLLED PHONONIC CRYSTAL, INDUCED PIEZOEFFECT, SURFACE ACOUSTIC WAVE, PERIODIC DOMAINS, FERROELECTRIC FILM.

Периодические доменные структуры в пьезо- и сегнетоэлектриках достаточно давно привлекают внимание исследователей. На основе таких структур разработаны устройства, применяемые в акустооптике и лазерной технике [1]. В сегнетоэлектриках существуют спонтанно поляризованные домены. Для образования упорядоченных периодических доменных структур обычно используются сильные пьезоэлектрики, такие как ниобат и танталат лития, легированные ионами железа. К кристаллам прикладывают знакопеременное электрическое поле напряженностью E порядка 10^7 В/м, вследствие чего происходит образование

достаточно устойчивых доменов в соответствии со знаком электрического поля [2].

Сегнетоэлектрические кристаллы с периодическими доменными структурами представляют собой фононные кристаллы, т. е. искусственно созданные структуры, в которых существуют запрещенные зоны и зоны пропускания звука. Фононные кристаллы имеют большие перспективы использования в различных областях науки и техники, в частности в акустоэлектронике на основе фононных кристаллов могут быть построены фильтры и резонаторы.

Ранее сообщалось о создании управляемых акустоэлектронных устройств на осно-

ве фононных кристаллов с характерными сегнетоэлектрическими периодическими доменными структурами, работающих на поверхностных акустических волнах [3]. Управление такими устройствами осуществляется путем лазерного нагрева поверхности и приложения высокого напряжения смещения, что затрудняет микроминиатюризацию подобных приборов.

Нами предлагается новый тип фононного кристалла, управляемого электрическим полем. В отличие от ранее созданных, формирование его периодических структур достигается не технологическим путем (травление, напыление, наращивание дополнительных слоев), а с помощью внешнего электрического поля.

Постановка задачи

В настоящей статье представлены результаты теоретических исследований периодических доменных структур, индуцированных в пленке титаната бария стронция $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$, находящегося в параэлектрической фазе. Как известно, в парафазе сегнетоэлектрик не обладает спонтанной поляризацией. В результате приложения электрического поля к сегнетоэлектрику, находящемуся в парафазе, возникает наведенный пьезоэффект, который обусловлен главным образом нелинейной электрострикцией. Этот эффект используется в перестраиваемых резонаторах на объемных акустических волнах [4, 5]. Работа таких резонаторов основана на зависимости упругих и пьезоэлектрических модулей сегнетоэлектрика от величины прикладываемого постоянного электрического поля. Указанные экспериментальные и теоретические зависимости были получены в работах [4–6].

Уравнения, связывающие напряженность прикладываемого электрического поля с этими модулями сегнетоэлектрика, имеют вид:

$$\tilde{h}_{ijm}(E_i) = h_{ijm} - 2G_{ijmn}\varepsilon_0\varepsilon_{ij}(E_i)E_j; \quad (1)$$

$$\tilde{C}_{ijmn}(E_i) = C_{ijmn} + M_{ijklmn}(\varepsilon_0\varepsilon_{ij}(E_i)E_j)^2, \quad (2)$$

где h_{ijm} — пьезоэлектрический тензор в отсутствие электрического поля (обусловлен дефектами в пленке); G_{ijmn} — тензор

электрострикции; E_i — компоненты вектора напряженности электрического поля; C_{ijmn} — тензор упругих модулей материала сегнетоэлектрика; M_{ijklmn} — тензор нелинейной электрострикции; ε_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума; ε_{ij} — тензор диэлектрической проницаемости сегнетоэлектрика.

Прикладывая периодическое электрическое поле к сегнетоэлектрику, мы получаем доменные структуры с изменяющимися пьезомодулями h_{ijm} в соответствии с периодом следования электродов. Конфигурация доменных структур зависит от электрического поля согласно уравнениям (1) и (2). Изменяя величину электрического поля, мы получаем возможность управлять параметрами запрещенных зон в фононном кристалле.

Описание конструкции управляемого фононного кристалла

Конструктивно фононный кристалл представляет собой подложку из материала с минимальным коэффициентом затухания поверхностных акустических волн. На поверхности подложки имеется нижний электрод; поверх электрода нанесена тонкая пленка сегнетоэлектрика $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ (рис. 1). На пленку 1 наносятся электроды 4 с периодом p , аналогичные тем, которые используются в приборах на поверхностных акустических волнах, — встречно-штыревым преобразователям (ВШП). Между управляющими электродами 4 и нижним 2 подается постоянное напряжение смещения. Толщина сегнетоэлектрической пленки 1 составляет 0,5–1,0 мкм, что позволяет создавать напряженность электрического поля $E \approx 10^6 - 10^7$ В/м при напряжениях смещения 1–10 В.

Запишем уравнения распространения упругой волны в фононном кристалле. Система уравнений распространения волн в пьезоэлектрике имеет вид [7]:

$$\begin{cases} C_{ijmn} \frac{\partial^2 U_m}{\partial x_j \partial x_n} + e_{mij} \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_j \partial x_m} = \rho \frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2}, \\ e_{ijm} \frac{\partial^2 U_j}{\partial x_i \partial x_m} - \varepsilon_{ij} \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_i \partial x_j} = 0, \end{cases} \quad (3)$$

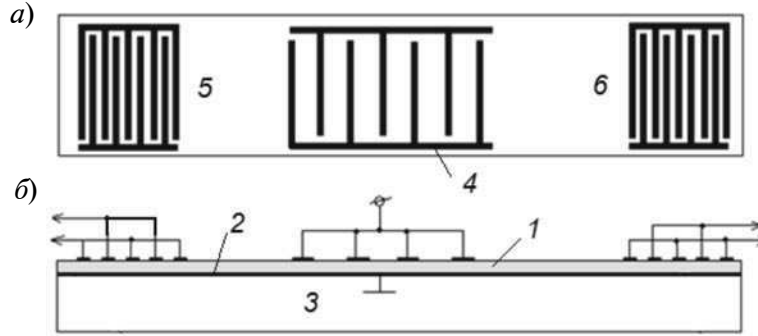


Рис. 1. Схема фононного кристалла, управляемого электрическим полем, в двух проекциях: а, б – виды сверху и сбоку соответственно;
1 – пленка сегнетоэлектрика, 2 – нижний электрод, 3 – сапфировая подложка, 4 – управляющие электроды, 5, 6 – входной и выходной встречно-штыревые преобразователи

где U_m – механическое смещение; ρ – плотность пьезоэлектрика; ϕ – электрический потенциал; e_{ijm} – пьезоэлектрический тензор, который связан с тензором h_{ijm} следующей зависимостью [6]:

$$e_{ijm} = \varepsilon_0 (\varepsilon_{ij} - 1) h_{ijm}. \quad (4)$$

Как было показано выше, упругие и пьезоэлектрические модули в фононном кристалле зависят от напряженности поля смещения.

Подставим уравнения (1) и (2) в систему (3) с учетом зависимости (4). Принимая во внимание, что напряженность электрического поля есть функция координат, т. е. $E = E(x, y, z)$, получаем систему уравнений, описывающих распространение упругой волны в фононном кристалле:

$$\begin{aligned} & \{C_{ijmn} + \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_{ij} (E_i(x, y, z)) \cdot M_{ijklmn} \times \\ & \quad \times [E_i(x, y, z)]^2 \} \frac{\partial^2 U_m}{\partial x_j \partial x_n} + \\ & + \varepsilon_0 \cdot [\varepsilon_{ij} (E_i(x, y, z)) (E_i(x, y, z)) - 1] \cdot \\ & \quad \times \{h_{mij} - 2\varepsilon_0 \varepsilon_{ij} (E_i(x, y, z)) \times \\ & \quad \times G_{ijmn} \cdot [E_i(x, y, z)]^2 \} \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_j \partial x_m} = \rho \frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2}; \quad (5) \\ & \varepsilon_0 \cdot [\varepsilon_{ij} (E_i(x, y, z)) - 1] \\ & \quad \times \left\{ h_{mij} - 2\varepsilon_0 \varepsilon_{ij} (E_i(x, y, z)) \cdot \frac{\partial^2 U_j}{\partial x_i \partial x_j} - \right. \\ & \quad \left. - \varepsilon_{ij} (E_i(x, y, z)) \cdot \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_i \partial x_j} \right\} = 0. \end{aligned}$$

Можно предположить, что периодические домены, образовавшиеся под управляющими электродами, имеют прямоугольную конфигурацию, соответствующую форме электродов. Однако распределение электрического поля в слоистых анизотропных структурах не является равномерным, имеют место краевые эффекты на границах электродов. В таком случае конфигурация доменов будет иметь более сложную форму. Аналитически решить данную задачу довольно сложно, поэтому необходимо применить численные методы.

Нами проведено численное моделирование фононного кристалла методом конечных элементов в двумерном случае.

Задача разбивалась на три этапа. На первом решалась задача электростатики, чтобы найти распределение электрического поля в сегнетоэлектрической пленке. На втором этапе сохраненные данные распределения электрического поля $E = E(x, y)$ использовались для решения системы уравнений (5) для двумерного случая. Материальные кон-

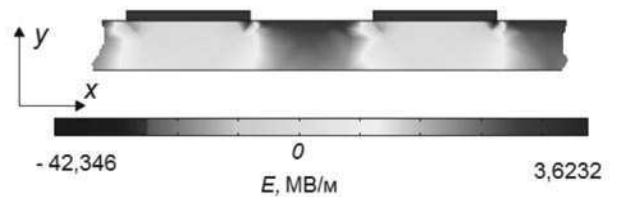


Рис. 2. Смоделированное распределение напряженности электрического поля в сегнетоэлектрической пленке I под управляющими электродами 4 (см. рис. 1)

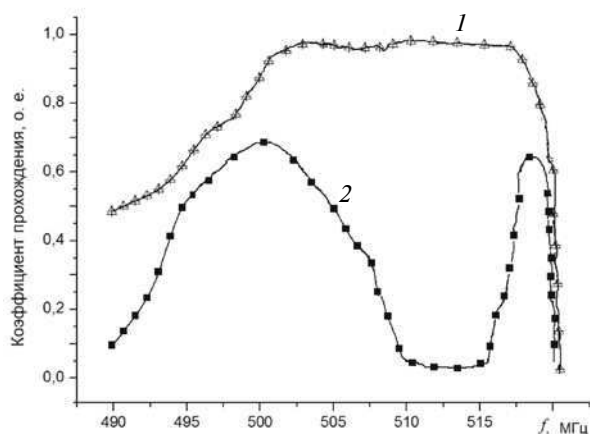


Рис. 3. Частотные зависимости коэффициента прохождения поверхностных акустических волн через индуцированный фоновый кристалл при выключенном (1) и включенном (2) электрических полях; соответствующие напряжения смещения равны 0 (1) и 5 В (2)

станты для титаната бария были взяты из работ [4 – 6]. Результат численного моделирования распределения электрического поля под электродами показан на рис. 2, где также видны краевые эффекты.

На третьем этапе исследовалась полноразмерная модель фоновый кристалла (см. рис. 1). Выполнялось моделирование возбуждения поверхностных акустических волн (ПАВ) входными ВШП, распространения ПАВ по подложке, взаимодействия с периодическими доменными структурами. С выходного ВШП получали данные о прошедшем сигнале.

На рис. 3 приведена частотная зависимость коэффициента прохождения для фоновый кристалла. Для возникновения запрещенной зоны размер каждого домена должен быть равен четверти длины волны на частоте запираия, т. е. удовлетворять условию брэгговского отражения: $d = V/(4 f_b)$, где d – размер домена, V – скорость ПАВ в фоновый кристалле, f_b – центральная частота запрещенной зоны. Количество доменов было принято равным 40. Для случая, указанного на рис. 3, центральная частота запрещенной зоны составляет 510 МГц, что соответствует длине волны 11 мкм. Как видно из графика, при включении электрического поля в фоновый кристалле происходит «включение» запрещенной зоны.

В районе 510 МГц наблюдается спадание характеристики. В диапазоне от 510 до 517 МГц спадание происходит практически до нуля. Ширина зоны заграждения получившегося фильтра составляет около 7 МГц.

На рис. 4 представлена дисперсионная кривая в первой зоне Бриллюэна для ПАВ в фоновый кристалле, рассчитанная методом конечных элементов (дисперсионные кривые для объемных волн не приведены). Расположение запрещенной зоны и ее ширина соответствует полосе заграждения полосового фильтра на рис. 3.

В данной работе проведено численное исследование нового типа управляемого фоновый кристалла. В результате конечно-элементного моделирования выявлено наличие фоновый запрещенной зоны для поверхностных акустических волн в структуре, состоящей из электрически индуцированных периодических доменов в сегнетоэлектрике. Показана возможность использования предложенного кристалла в качестве перестраиваемого миниатюрного фильтра на поверхностных акустических волнах. В дальнейшем планируются более подробные исследования перестройки фоновый кристалла, влияния электрического поля на характеристики распространяю-

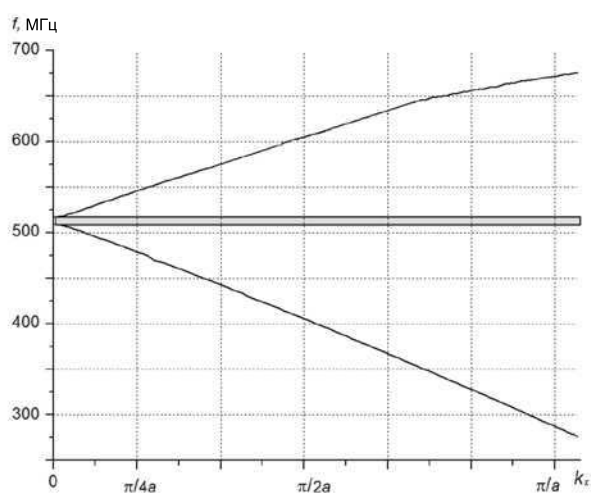


Рис. 4. Дисперсионная характеристика фоновый кристалла для поверхностных акустических волн в первой зоне Бриллюэна; запрещенная зона показана серым прямоугольником в середине графика



щейся волны и на ширину запрещенной зоны. Для уменьшения влияния электродов, нагружающих поверхность волнового пространства, целесообразно рассмотреть

другие типы волн, например волноводные или волны Лява и Стоунли. Планируется также экспериментальное исследование фононного кристалла.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Shi-Ning Zhu.** Engineering ferroelectric superlattice materials and applications [Text] / Shi-Ning Zhu, Yong-Yuan Zhu, Yan-Qing Lu, Nai-Ben Ming // Proc. of the 2000 12th IEEE International Symp. — 2000. — Vol. 1. — P. 313–315.

2. **Голенищев-Кутузов, А.В.** Индуцированные домены и периодические доменные структуры в электро- и магнитоупорядоченных веществах [Текст] / А.В. Голенищев-Кутузов, В.А. Голенищев-Кутузов, Р.И. Калимуллин // Успехи физических наук. — 2000. — Т. 170. — Вып. 7. — С. 697–712.

3. **Голенищев-Кутузов, А.В.** Перестраиваемый акустический резонатор на периодических доменных структурах [Текст] / А.В. Голенищев-Кутузов, В.А. Голенищев-Кутузов, Р.И. Калимуллин, А.А. Потапов // Письма в ЖТФ. — 2012. — Т. 38. — Вып. 18. — С. 1–6.

4. **Turalchuk, P.** Electrically tunable bulk acoustic

filters with induced piezoelectric effect in BSTO film [Text] / P. Turalchuk, I. Vendik, O. Vendik, J. Berge // Proc. of the 38th European Microwave Conf. October 2008, Amsterdam: IEEE, 2008. — P. 274–277.

5. **Berge, J.** Tunable bulk acoustic wave resonators based on $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{TiO}_3$ thin films and a $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ Bragg reflector [Text] / J. Berge, S. Gevorgian // IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control. — 2011. — Vol. 58. — P. 2768–2771.

6. **Noeth, A.** Electrical tuning of dc bias induced acoustic resonances in paraelectric thin films [Text] / A. Noeth, T. Yamada, A.K. Tagantsev, N. Setter // J. Appl. Physics. — 2008. — Vol. 104. — P. 094102-1–094102-10.

7. **Дьелесан, Э.** Упругие волны в твердых телах. Применение для обработки сигналов [Текст] / Э. Дьелесан, Д. Руайе. — М.: Наука, 1982. — 424 с.

REFERENCES

1. **Shi-Ning Zhu, Yong-Yuan Zhu, Yan-Qing Lu and Nai-Ben Ming.** Ferroelectric Superlattice: Materials and Applications. Phase Transitions: A Multinational Journal. — 2000. — Vol. 72. — Iss. 4.

2. **Golenishchev-Kutuzov A.V., Golenishchev-Kutuzov V.A., Kalimullin R.I.** Induced domains and periodic domain structures in electrically and magnetically ordered materials. — 2000. — T. 170. — Vyp. 7. — S. 697–712. (rus)

3. **Golenishchev-Kutuzov A.V., Golenishchev-Kutuzov V.A., Kalimullin R.I., Potapov A.A.** Technical Physics Letters, September 2012. — T. 38. — Vyp. 18. — S. 1–6. (rus)

4. **Turalchuk P., Vendik I., Vendik O., Berge J.** Electrically Tunable Bulk Acoustic Filters with Induced Piezoelectric Effect in BSTO Film. Proceedings

of the 38th European Microwave Conference. — Amsterdam, The Netherlands. — 2008. — P. 274–277.

5. **Berge J., Gevorgian S.** Tunable Bulk Acoustic Wave Resonators Based on $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{TiO}_3$ Thin Films and a $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ Bragg Reflector. IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control. — 2011. — Vol. 58. — P. 2768–2771.

6. **Noeth A., Yamada T., Tagantsev A.K., Setter N.** Electrical tuning of dc bias induced acoustic resonances in paraelectric thin films. Journal of Applied Physics. — 2008. — Vol. 104. — P. 094102-1–094102-10.

7. **Royer D., Dieulesain E.** Elastic Waves in Solids Free and Guided Propagation. — Moscow: Nauka, 1982. — 424 p.

ПАЩЕНКО Владимир Петрович — аспирант кафедры физики и технологии наноструктур Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

v.paschenko@gmail.com

УДК 539.293+539.55

Д.С. Козырев, Т.М. Бурбаев

ЖЕЛТО-ЗЕЛЕНАЯ ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНОЙ ЖИДКОСТИ В ТУННЕЛЬНО-ПРОЗРАЧНЫХ КРЕМНИЕВО-ГЕРМАНИЕВЫХ СЛОЯХ КРЕМНИЕВЫХ ГЕТЕРОСТРУКТУР

D.S. Kozyrev^{1,2}, T.M. Burbaev²

¹ Moscow State University,
1 Leninskiye Gory, Moscow, 119991, Russia.

² P.N. Lebedev Physical Institute,
53 Leninskiy Ave., Moscow, 119991, Russia.

ELECTRON-HOLE LIQUID YELLOW-GREEN PHOTOLUMINESCENCE IN SiGe TUNNEL-TRANSPARENT LAYERS OF SILICON HETEROSTRUCTURES

В туннельно-прозрачных для электронов слоях SiGe гетероструктуры Si/Si_{0.91}Ge_{0.09}/Si методом фотолюминесценция (ФЛ) в ближней инфракрасной (БИК) и видимой областях спектра исследовано образование квазидвумерных многочастичных возбужденных состояний – биэкситонов, электронно-дырочной жидкости (ЭДЖ) и плазмы. Сравнение формы линии ФЛ в видимой области и численной свертки спектра в БИК области, отвечающего одноэлектронным переходам в ЭДЖ, показало, что излучение в видимой области при низких температурах и высоких уровнях возбуждения вызвано двухэлектронными переходами в квазидвумерной ЭДЖ.

КРЕМНИЕВО-ГЕРМАНИЕВАЯ ГЕТЕРОСТРУКТУРА, ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНАЯ ЖИДКОСТЬ, ДВУХЭЛЕКТРОННЫЕ ПЕРЕХОДЫ.

The formation of quasi-two-dimensional multiparticle excitations – biexcitons, electron-hole liquid (EHL) and plasma in tunnel-transparent for electrons SiGe layers of Si/Si_{0.91}Ge_{0.09}/Si heterostructures has been investigated by methods of photoluminescence (PL) in the near-infrared (NIR) and visible spectral ranges. When the PL line form in the visible region was compared with the numerical convolution of the spectrum in the NIR region, corresponding to one-electron transitions in EHL, it was apparent that the radiation in the visible region at low temperatures and high levels of excitation were caused by the two-electron transitions in quasi-two-dimensional EHL.

SiGe HETEROSTRUCTURES, ELECTRON-HOLE LIQUID, TWO-ELECTRON TRANSITIONS.

Данная статья посвящена исследованию многочастичных неравновесных состояний – биэкситонов, электронно-дырочной жидкости (ЭДЖ) и плазмы, возникающих при низких температурах с повышением уровня возбуждения, в напряженных квазидвумерных кремниево-германиевых (SiGe)-слоях гетероструктур Si/Si_{1-x}Ge_x/Si, методом спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ).

В объемных образцах кремния и германия электронно-дырочная жидкость обладает высокой стабильностью благодаря

многодолинности электронного спектра. Большие времена жизни экситонов в этих непрямозонных полупроводниках, позволяющие достаточно просто получать их высокую плотность, в сочетании с высокой стабильностью ЭДЖ (образуется при повышении плотности экситонов), позволили в разнообразных экспериментах, проведенных во второй половине прошлого века, хорошо изучить свойства фазового перехода «газ экситонов – ЭДЖ» [1–6]. В настоящей работе такой фазовый переход исследуется для квазидвумерного случая, в слое тол-



щиной 2 нм (боровский радиус экситона в объемном кремнии равен 5 нм).

Впервые свойства квазидвумерной ЭДЖ в кремниевых гетеросистемах были исследованы в гетероструктуре $\text{SiO}_2/\text{Si}/\text{SiO}_2$ 1-го рода со слоем кремния, образующим квантовые ямы (КЯ) для электронов и дырок [7, 8]. Исследуемая в данной работе гетеросистема $\text{Si}/\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ предоставляет более широкие экспериментальные возможности. Для реализации размерного квантования в ней можно варьировать не только ширину КЯ (т. е. толщину слоя $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$), но также и ее глубину путем изменения параметра x , т. е. состава, определяющего величины разрывов зон на гетерогранице $\text{Si}/\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$. Кроме того, структуры $\text{Si}/\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ относятся к гетероструктурам второго рода, что также может привести к большему разнообразию свойств неравновесной электронно-дырочной системы. Напряженный слой твердого раствора SiGe в гетероструктурах $\text{Si}/\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ образует потенциальную яму для дырок в валентной зоне. Глубина этой ямы ΔE_v превышает характерные тепловые энергии носителей заряда даже при небольшом содержании германия. В зоне проводимости слой SiGe образует барьер, разделяющий неравновесные электроны и дырки. Высота этого барьера ΔE_c уменьшается с уменьшением содержания германия и при $x \leq 0,1$ не превышает энергию связи экситонов в объемном кремнии [9, 10]. Ввиду наличия барьера, разделяющего носители, пространственно прямые экситоны и их конденсация в ЭДЖ наблюдались в таких гетероструктурах с достаточно широким барьером только в слоях с низким содержанием германия ($x \approx 0,05$ в работах [11, 12]). В таких структурах с увеличением уровня возбуждения искривление зон, вызванное кулоновским взаимодействием пространственно разделенных электронов и дырок, создает потенциальную яму для электронов в слое SiGe [13], сравнимую с высотой барьера, фактически превращая такие структуры в гетероструктуры первого рода.

ЭДЖ может наблюдаться и при большем содержании германия, если барьер в зоне проводимости — туннельно-прозрачный [14].

В этом случае неравновесные электроны, так же как и дырки, оказываются в SiGe -слое, образуя пространственно прямые экситоны, которые при увеличении плотности, при низких температурах, образуют пространственно прямую ЭДЖ.

В данной работе исследуется структура с туннельно-прозрачным барьером с содержанием германия в слое $x = 0,09$. В работе [15] в этой структуре при $T < 18$ К и высоких уровнях возбуждения была обнаружена и исследована квазидвумерная ЭДЖ в слое SiGe . При низком уровне накачки в температурном диапазоне $12 \text{ К} < T < 23 \text{ К}$ в этой структуре было обнаружено также излучение свободных биэкситонов. Эти результаты были получены методом спектроскопии ФЛ в ближней инфракрасной (БИК) области, возникающей при одноэлектронных переходах.

Известно, что в объемном кремнии ФЛ наблюдалась не только при одноэлектронных переходах в БИК области спектра, но также при двухэлектронных переходах в видимой области. Энергия квантов такой ФЛ близка к удвоенной ширине запрещенной зоны. При комнатной и азотной температурах наблюдалось излучение, обусловленное двухэлектронными переходами при межзонной рекомбинации [16], при гелиевой температуре — двухэлектронными переходами в ЭДЖ [17] и биэкситонах [18, 19]. В слое SiGe исследуемой гетероструктуры при $T = 15$ К в видимой области наблюдалось две линии ФЛ: широкая при большом уровне накачки и узкая при низком уровне [15]. Авторы статьи [15], по аналогии с работами [17, 19], предположили, что эти линии обусловлены двухэлектронными переходами, происходящими в квазидвумерной ЭДЖ и биэкситонах соответственно. В настоящей работе это предположение обосновывается достаточно строго путем численного сравнения форм линий ФЛ в БИК и видимой областях. Для точного описания формы линий излучения были проведены измерения спектров ФЛ таких структур в широком интервале уровней возбуждения и при понижении температуры до 1,8 К. В результате было показано, что в видимой области действительно наблюдается ФЛ

ЭДЖ, обусловленная двухэлектронными переходами.

Методика эксперимента

Исследуемая структура с напряженными слоями $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ была выращена на кремниевой подложке $\text{Si}(001)$ методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Толщина слоя $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ составляла 2 нм, а значения толщины буферного и защитного слоев были равны 100 нм. Содержание германия в слое твердого раствора $x = 9\%$. При малых значениях x зонная структура ненапряженного твердого раствора $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ такая же, как у кремния. В объемном кремнии дно зоны проводимости шестикратно вырождено по энергии; зона проводимости имеет шесть эквивалентных минимумов энергии, а максимум валентной зоны (образованный зонами тяжелых и легких дырок) двукратно вырожден (конфигурация зон $\text{Si}(6,2)$ [3]). Из-за различия в параметрах кристаллических решеток кремния и SiGe псевдоморфный слой твердого раствора в структуре $\text{Si}/\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ испытывает радиальное сжатие в плоскости роста и одноосное растяжение вдоль направления роста. Внутренние напряжения в слое приводят к снятию вырождения.

На рис. 1, а представлена схема изоэнергетических поверхностей в зоне проводимости слоя SiGe гетероструктуры $\text{Si}/\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$. Шестикратное (без учета спина) вырождение дна зоны проводимости

снято вследствие напряжений в слое: два минимума Δ_2 расположены выше, а четыре минимума Δ_4 , которые являются дном зоны в напряженном SiGe -слое, — ниже по энергии [10, 20]. По этой же причине, а также вследствие размерного квантования вырождение валентной зоны также снято; при этом потолком валентной зоны является зона тяжелых дырок (конфигурация зон — $\text{Si}(4,1)$).

На рис. 1, б представлена зонная диаграмма гетероструктуры $\text{Si}/\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$. Слой твердого раствора $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ образует потенциальный барьер для электронов в зоне проводимости величиной $\Delta E_c(\Delta_4) \approx 10$ мэВ [9, 21] и квантовую яму для дырок в валентной зоне, глубина которой составляет $\Delta E_v \approx 66$ мэВ [20]. Потолком валентной зоны в слое является зона тяжелых дырок с энергией размерного квантования $E_{hh} \approx 45$ мэВ. При таких параметрах потенциального барьера он является туннельно-прозрачным для электронов и максимум электронной плотности находится в центре барьера [14].

Исследования спектров ФЛ в ближней инфракрасной (БИК) области спектра проводились при температурах 1,8–60 К и уровнях возбуждения до 150 Вт/см². Для квазистационарного фотовозбуждения структуры использовался гелий-кадмиевый лазер с длиной волны $\lambda = 0,44$ мкм. Рекомбинационное излучение регистрировалось с помощью германиевого *pin*-фотодиода,

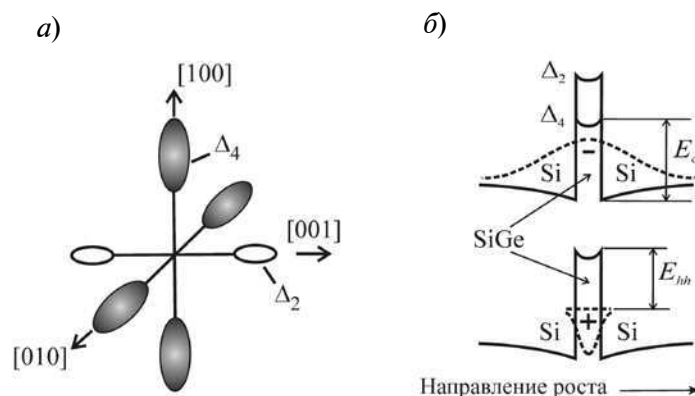


Рис. 1. Схема изоэнергетических поверхностей в зоне проводимости слоя твердого раствора (а) и зонная диаграмма (б) гетероструктуры $\text{Si}/\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$. Штриховыми линиями показаны распределения электронной и дырочной плотностей поперек слоя и уровень размерного квантования тяжелых дырок в КЯ



охлаждаемого жидким азотом, с использованием синхронного детектирования.

Исследовалась также ФЛ в видимой области спектра. Ширина запрещенной зоны кремния E_g при гелиевых температурах равна $\approx 1,17$ эВ. Эта энергия соответствует БИК области в спектрах ФЛ. Люминесценция в видимой области спектра возникает при совместной рекомбинации четырех частиц: двух электронов и двух дырок (так называемые двухэлектронные переходы). В объемном кремнии такая рекомбинация наблюдалась в работе [17]. Энергия испускаемых фотонов при такой рекомбинации равна суммарной энергии всех рекомбинирующих частиц. Закон сохранения импульса при таких переходах выполняется автоматически, поскольку в рекомбинации участвуют электроны из противоположных долин зоны проводимости (рис. 1, а). Совместная рекомбинация четырех частиц сопряжена с уменьшением вероятности рекомбинационных переходов и, следовательно, с величиной исследуемых сигналов ФЛ. Измерения в желто-зеленой области спектра проводились нами в широком интервале температур ($T = 1,8 - 15$ К) и уровнях возбуждения до 150 Вт/см². Для фотовозбуждения использовалось излучение титан-сапфирового лазера ($\lambda \approx 0,75$ мкм). Излучение ФЛ в видимой области спектра регистрировалось с помощью ПЗС-матрицы, охлаждаемой жидким азотом.

Результаты и их обсуждение

На рис 2, а представлен обзорный спектр ФЛ в БИК области исследуемой гетероструктуры Si/Si_{0,91}Ge_{0,09}/Si, измеренный при $T = 15$ К.

Наиболее интенсивными линиями являются ТО-фононные компоненты спектра от слоя SiGe (SiGe:ТО) и кремниевой подложки Si:ТО (в рекомбинации принимает участие поперечный оптический ТО-фонон). Фононная компонента от слоя представлена линиями 1 свободного пространственно прямого экситона, свободного биэкситона (2) и линией 3 ЭДЖ. В излучении кремниевой подложки доминирует линия 5 свободного экситона, а также линия 4 связан-

ного экситона. Бесфононные компоненты спектра SiGe : NP (правая часть рисунка) и Si:NP (не показаны) выражены значительно слабее фононных.

На рис. 2, б показана трансформация наиболее интенсивной ТО-компоненты спектра ФЛ гетероструктуры в БИК области при понижении температуры. Барьер в зоне проводимости туннельно прозрачен для электронов, поэтому волновая функция Δ_4 -электронов проникает в слой SiGe (см. рис. 1, б). В силу этого экситоны, образующиеся в слое, являются пространственно прямыми. При относительно высокой температуре $T = 21$ К (спектр V, линия 1 на рис. 2, б) в спектре ФЛ наблюдается только линия свободного экситона. С понижением

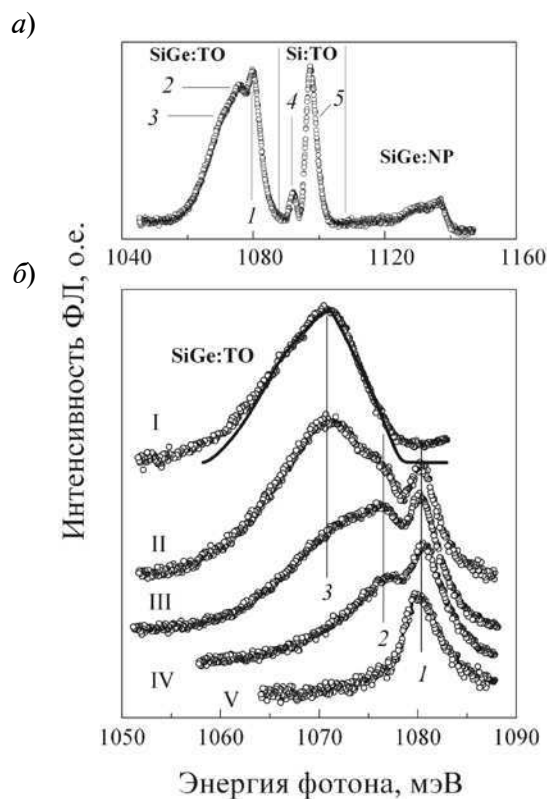


Рис. 2. Спектры ФЛ гетероструктуры Si/Si_{0,91}Ge_{0,09}/Si в БИК области шкалы электромагнитных волн; а – обзорный спектр, $T = 15$ К; б – изменение ТО-компоненты спектра при понижении температуры: $T = 21$ К (для спектра V), 18 К (IV), 15 К (III), 12 К (II), 1,8 К (I). Спектры II – V измерены при интенсивности $P = 3,8$ Вт·см⁻², спектр I – при $P = 8,5$ Вт·см⁻². Обозначения линий указаны в тексте. На спектре I сплошная линия – результат расчета

температуры, при $T = 18$ К (спектр IV, линия 2), в спектре возникает линия свободных биэкситонов. При дальнейшем понижении температуры, при $T = 15$ К (спектр III, линия 3), образуется пространственно прямая, электронно-дырочная жидкость. Затем линия ЭДЖ становится доминирующей в спектре (спектр I), при этом ее нормированная форма и положение в спектре перестают зависеть от уровня возбуждения и практически не зависят от температуры.

Анализ формы линии ФЛ пространственно прямой ЭДЖ в квазидвумерных слоях гетероструктуры $\text{Si}/\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ проведен нами по аналогии с анализом, проведенным в работе [22] для объемных полупроводников. Для трехмерного случая спектральная плотность излучения ФЛ ЭДЖ при одноэлектронных переходах – $J(h\nu_1)$ описывается следующим выражением:

$$J(h\nu_1) = J_0 \int_0^{h\nu_1} D_e(E) D_h(h\nu_1 - E) \times \times f(E, E_{Fe}) f(h\nu_1 - E, E_{Fh}) dE, \quad (1)$$

где $D_{e,h}(E)$ – плотности состояний, и

$$f(E, E_{Fe,h}) = (1 + \exp((E - E_{Fe,h}) / kT))^{-1}$$

– функции Ферми для электронов и дырок.

Энергия фотона $h\tilde{\nu}$ излучения ТО-компоненты ЭДЖ равна

$$h\tilde{\nu} = h\nu_1 + E'_g - \hbar\omega,$$

где E'_g – перенормированная ширина запрещенной зоны в ЭДЖ; $\hbar\omega$ – энергия поперечного оптического (ТО) фонона в слое SiGe (равна 59 мэВ).

Матричный элемент вероятности перехода J_0 не зависит от энергии и вынесен за знак интеграла. Для трехмерного случая зависимость плотности состояний от энергии корневая:

$$D_{e,h}(E) \sim E^{1/2},$$

а в двумерном случае плотность состояний не зависит от энергии. В работе [14] показано, что в гетероструктурах с туннельно-прозрачным барьером для электронов и КЯ для дырок электроны проявляют квазитрехмерные свойства ($D_e \sim E^{1/2}$), а дырки –

квазидвумерные ($D_h = \text{const}$).

На рис. 2, б на верхнем спектре сплошной линией показана форма линии ФЛ для $T = 1,8$ К, рассчитанная по формуле (1). Сравнение экспериментальных спектров с выражением (1) показало, что температура неравновесных носителей заряда близка к температуре в рабочей камере криостата. При обработке формы линии использовались два подгоночных параметра:

$$E_F = E_{Fe} + E_{Fh}, \quad \beta = E_{Fe} / E_F.$$

Параметр β зависит от числа долин ν_e , в которых находятся электроны в слое, эффективных масс плотностей состояний для электронов (m_{de}) и дырок (m_{dhh}), а также от толщины слоя d . Выбор β в качестве подгоночного параметра связан с тем, что эффективная масса плотности состояний тяжелых дырок m_{dhh} в напряженном слое SiGe зависит от их энергии [23] и определяется величиной E_{Fh} .

Нормированные спектры ФЛ в видимой (желто-зеленой) области спектра представлены на рис. 3. При достаточно высоком уровне накачки, при энергии, приблизительно равной удвоенной энергии НР-компонент ФЛ в БИК области (2255 мэВ), в спектрах доминирует широкая линия ФЛ с полушириной FWHM ≈ 24 мэВ. Так же как в БИК области, при используемых уровнях накачки линия люминесценции ЭДЖ обнаруживается при $T \leq 15$ К. Спектры а–в (см. рис. 3) измерены при 15 К, но при различных уровнях накачки P . При $P > 20$ Вт·см $^{-2}$ форма линии ФЛ и ее положение в спектре перестают изменяться. Это свойство характерно для ЭДЖ. Сравнение форм линий ЭДЖ в БИК и видимой областях необходимо проводить при наиболее низких температурах, так как в этом случае указанные формы почти не зависят от температуры, а определяются только внутренними характеристиками системы: зависимостью плотности состояний для электронов и дырок от энергии E , а также величинами энергии Ферми электронов и дырок в ЭДЖ (см. формулу (1)). Спектр г на рис. 3 (так же как и спектр I на рис. 2) измерен при температуре 1,8 К.

Спектральная плотность излучения,

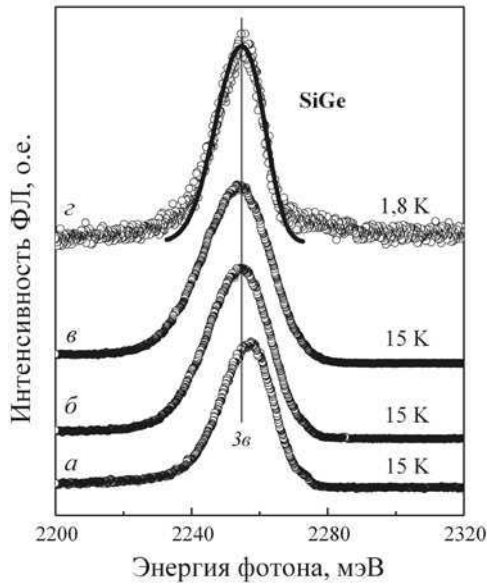


Рис. 3. Спектры ФЛ гетероструктуры $\text{Si}/\text{Si}_{0.91}\text{Ge}_{0.09}/\text{Si}$ в видимой области шкалы электромагнитных волн при различных температурах T и уровнях интенсивности накачки P , $\text{Вт}\cdot\text{см}^{-2}$: 20 (а), 85 (б), 150 (в), 260 (з); T , К: 15 (а – в), 1,8 (з). Представлена численная свертка экспериментального спектра 1 (см. рис.2, б) (сплошная линия). Спектральная линия 3б – ФЛ ЭДЖ в видимой области

определяющая форму линии двухэлектронной рекомбинации в ЭДЖ, связана со спектральной формой линии ТО-фононной компоненты ФЛ ЭДЖ при одноэлектронных переходах следующим соотношением [17]:

$$J(h\nu_2) = \iint J(h\nu_1)J(h\nu'_1) \times \delta(h\nu_2 - h\nu_1 - h\nu'_1 - 2\hbar\omega) d\nu_1 d\nu'_1, \quad (2)$$

где $\hbar\omega$ – энергия ТО-(поперечного оптического) фонона.

Выражение (2) предполагает выполнение закона сохранения импульса между противоположными долинами, но не в пределах одной долины [17]. Интегрируя выражение (2) по $d\nu'_1$ с δ -функцией, получаем:

$$J(h\nu_2) = \int J(h\nu_1) \times \times J[(h\nu_2 - 2\hbar\omega) - h\nu_1] d\nu_1. \quad (3)$$

Таким образом, форма линии двухэлектронных переходов представляет собой свертку форм линий одноэлектронных пе-

реходов. Хорошее отношение сигнал/шум экспериментальной установки позволили нам для расчета $J(h\nu_2)$ использовать, в отличие от работы [17], экспериментальную, а не теоретическую зависимость $J(h\nu_2)$. Преимущество при таком подходе заключается не только в исключении подгоночных параметров (энергий Ферми для носителей в ЭДЖ), но и в отказе от предположения о виде зависимости плотности состояний для электронов и дырок от энергии $D_{e,h}(E)$. Численные расчеты проводились с использованием языка программирования C#. Отметим, что согласно выражению (3) свертка формы линии в БИК области сводится к численному интегрированию, при этом экспериментальные шумовые выбросы сглаживаются. Результат интегрирования (сплошная линия на верхнем спектре рис. 3) совмещен со спектром з, измеренным при температуре 1,8 К в видимой области спектра. Хорошее совпадение формы линии ФЛ (экспериментально измеренной) в видимой области со сверткой формы линии ФЛ, измеренной в БИК области, доказывает, что природа линий ФЛ в этих двух случаях одинакова.

Таким образом, в работе измерены спектры ФЛ квазидвумерного слоя SiGe гетероструктуры $\text{Si}/\text{Si}_{0.91}\text{Ge}_{0.09}/\text{Si}$ в видимой и БИК областях шкалы электромагнитных волн при низких (вплоть до 1,8 К) температурах. Проведено сравнение формы линии ФЛ, экспериментально измеренной в видимой области, со сверткой экспериментальной формы линии ФЛ, измеренной в БИК области. Показано, что природа линий ФЛ в этих двух случаях одинакова. В БИК области мы наблюдаем излучение при одноэлектронных рекомбинационных переходах, в квазидвумерной ЭДЖ, а в видимой – при двухэлектронных. Тем самым получено новое дополнительное доказательство существования квазидвумерной ЭДЖ по спектрам ФЛ в видимой области.

Авторы признательны доктору физико-математических наук, заведующему отделением физики твердого тела ФИАН Н.Н. Сибельдину и кандидату физико-

математических наук, старшему научному сотруднику теоретического отдела ФИАН А.П. Силину за обсуждение результатов; кандидату физико-математических наук, старшему научному сотруднику ИФМ РАН Д.Н. Лобанову и кандидату физико-математических наук, заведующему лабораторией ИФМ РАН А.В. Новикову за выращивание структур; научному сотруд-

нику ФИАН М.Л. Скорикову и кандидату физико-математических наук, младшему научному сотруднику ФИАН Д.В. Шепелю за помощь при измерениях ФЛ в видимой области.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты 13-02-00853, 13-02-90467) и программами РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Rice, T.M.** Electron-hole liquid in semiconductors: Theoretical aspects [Text] / T.M. Rice // *Solid State Physics*. – New York: Academic Press, 1977. – Vol. 32. – P. 1–86.
2. **Hensel, J.C.** Electron-hole liquid in semiconductors: Experimental aspects [Text] / J.C. Hensel, T.G. Phillips, G.A. Thomas // *Ibid.* – P. 87–314.
3. The electron-hole drops in semiconductors [Text] // *Modern Problems in Condensed Matter Sciences* / Eds. C.D. Jeffries and L.V. Keldysh. – Amsterdam: North-Holland, 1983. – Vol. 6. – 656 p.
4. **Keldysh, L.V.** Electron-hole liquid in semiconductors [Text] / L.V. Keldysh, N.N. Sibeldin // *Ibid.* Eds. W. Eisenmenger, A.A. Kaplyanskii. – Amsterdam: North-Holland, 1986. – Vol. 16. – P. 455–686.
5. **Тиходеев, С.Г.** Электронно-дырочная жидкость в полупроводниках [Текст] / С.Г. Тиходеев // *Успехи физических наук*. – 1985. – Т. 145. – С. 3–50.
6. **Sibeldin, N.N.** Electron-hole liquid in semiconductors [Text] / N.N. Sibeldin // *Problems of Condensed Matter Physics: Quantum coherence phenomena in electron-hole and coupled matter-light systems: International Series of Monographs on Physics* / Eds. A.L. Ivanov, S.G. Tikhodeev. – Oxford: Oxford University Press, 2008. – Vol. 139. – P. 227–257.
7. **Pauc, N.** Two-dimensional electron-hole liquid in single Si quantum wells with large electronic and dielectric confinement [Text] / N. Pauc, V. Calvo, J. Eymery [et al.] // *Phys. Rev. Lett.* – 2004. – Vol. 92. – P. 236802-1–236802-4.
8. **Pauc, N.** Electronic and optical properties of Si/SiO₂ nanostructures. II. Electron-hole recombination at the Si/SiO₂ quantum-well – quantum-dot transition [Text] / N. Pauc, V. Calvo, J. Eymery [et al.] // *Phys. Rev. B*. – 2005. – Vol. 72. – P. 205325-1–205324-8.
9. **Penn, C.** Application of numerical exciton-wave-function calculations to the question of band alignment in Si/Si_{1-x}Ge_x quantum wells [Text] / C. Penn, F. Schdfler, G. Bauer [et al.] // *Phys. Rev. B*. – 1999. – Vol. 59. – P. 13314–13321.
10. **Van de Walle, C.G.** Theoretical calculations of hetero-junction discontinuities in the Si/Ge system [Text] / C.G. Van de Walle, R.M. Martin // *Phys. Rev. B*. – 1986. – Vol. 34. – P. 5621–5634.
11. **Бурбаев, Т.М.** Электронно-дырочная жидкость в напряженных SiGe-слоях кремниевых гетероструктур [Текст] / Т.М. Бурбаев, Е.А. Бобрик, В.А. Курбатов [и др.] // *ЖЭТФ*. – 2007. – Т. 85 – Вып. 7. – С. 410–413.
12. **Багаев, В.С.** Каналы излучательной рекомбинации и фазовые переходы в системе неравновесных носителей в тонкой квантовой яме Si_{0.93}Ge_{0.07}/Si [Текст] / В.С. Багаев, В.В. Зайцев, В.С. Кривобок [и др.] // *ЖЭТФ*. – 2008. – Т. 134. – Вып. 5. – С. 988–995.
13. **Baier, T.** Type-II band alignment in Si/Si_{1-x}Ge_x quantum wells from photoluminescence line shifts due to optically induced band-bending effects: Experiment and theory [Text] / T. Baier, U. Mantz, K. Thonke [et al.] // *Phys. Rev. B*. – 1994. – Vol. 50. – № 20. – P. 15191–15196.
14. **Бурбаев, Т.М.** Электронно-дырочная жидкость и экситонные молекулы в квазидвумерных SiGe-слоях гетероструктур Si/SiGe/Si [Текст] / Т.М. Бурбаев, М.Н. Гордеев, Д.Н. Лобанов [и др.] // *Письма в ЖЭТФ*. – 2010. – Т. 92. – Вып. 5. – С. 341–345.
15. **Shepel, D.** Quasi-two-dimensional electron-hole liquid and biexcitons in SiGe layers of Si/SiGe/Si heterostructures [Text] / D. Shepel, T. Burbaev, N. Sibeldin [et al.] // *Physica Status Solidi. C8*. – 2011. – № 4. – P. 1186–1189.
16. **Betzler, K.** Two-electron band-to-band transitions in solids [Text] / K. Betzler, T. Weller, R. Conradt // *Phys. Rev. B*. – 1972. – Vol. 6. – P. 1394–1399.
17. **Betzler, K.** Two-electron transitions in the condensed phase of nonequilibrium carriers in Si [Text] / K. Betzler, R. Conradt // *Phys. Rev. Lett.* – 1972. – Vol. 28. – № 21 – P. 1562–1563.
18. **Schmid, W.** Four-particle radiative transitions of biexcitons and multiple bound excitons in Si [Text] / W. Schmid // *Phys. Rev. Lett.* – 1980.



— Vol. 45. — P. 1726–1729.

19. **Thewalt, M.L.W.** Green and near-infrared luminescence due to the biexcitons in unperturbed silicon [Text] / M.L.W. Thewalt, W.G. McMullan // *Phys. Rev. B.* — 1984. — Vol. 30. — P. 6232–6234.

20. **Yang, L.** Si/SiGe heterostructure parameters for device simulations [Text] / L. Yang, J.R. Watling, R.C.W. Wilkins [et al.] // *Semicond. Sci. Technol.* — 2004. — Vol. 19. — P. 1174–1182.

21. **Rieger, M.M.** Electronic-band parameters in strained $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ alloys on $\text{Si}_{1-y}\text{Ge}_y$ substrates [Text] / M.M. Rieger, P. Vogl // *Phys. Rev. B.* — 1993.

— Vol. 48. — № 19. — P. 14276–14286.

22. **Pokrovsky, Ya.E.** Experimental evidences of the existence of condensed phase of non-equilibrium charge carriers in Ge and Si [Text] / Ya.E. Pokrovsky, A.S. Kaminsky, K.I. Svistunova // *Proc. of the Tenth International Conf. on the Physics of Semiconductors.* — Cambridge, Mass., AEC Division of Technical Information, Springfield, Virginia, 1970. — 504 p.

23. **Manku, T.** Effective mass for strained p -type Si [Text] / T. Manku, A. Nathan // *J. App. Phys.* — 1991. — Vol. 69. — № 12. — P. 8414–8416.

REFERENCES

1. **Rice T.M.** Electron-hole liquid in semiconductors: Theoretical aspects. *Solid State Physics.* — New York: Academic Press, 1977. — Vol. 32. — P. 1–86.

2. **Hensel J.C., Phillips T.G., Thomas G.A.** Electron-hole liquid in semiconductors: Experimental aspects. *Solid State Physics.* — New York: Academic Press, 1977. — Vol. 32. — P. 87–314.

3. The electron-hole drops in semiconductors. *Modern Problems in Condensed Matter Sciences.* Eds. C.D. Jeffries and L.V. Keldysh, Amsterdam: North-Holland, 1983. — Vol. 6. — 656 p.

4. **Keldysh L.V., Sibeldin N.N.** Electron-hole liquid in semiconductors. *Modern Problems in Condensed Matter Sciences.* Eds. W. Eisenmenger, A.A. Kaplyanskii. — Amsterdam: North-Holland. — 1986. — Vol. 16. — P. 455–686.

5. **Tikhodeev S.G.** Elektronno-dyrochnaia zhidkost' v poluprovodnikakh. *Physics-USpekhi*, 1985. — T. 145. — S. 3–50. (rus)

6. **Sibeldin N.N.** Electron-hole liquid in semiconductors. *Problems of Condensed Matter Physics: Quantum coherence phenomena in electron-hole and coupled matter-light systems: International Series of Monographs on Physics*, Eds. A.L. Ivanov, S.G. Tikhodeev, Oxford, Oxford University Press. — 2008. — Vol. 139. — P. 227–257.

7. **Pauc N., Calvo V., Eymery J. et al.** Two-dimensional electron-hole liquid in single Si quantum wells with large electronic and dielectric confinement. *Phys. Rev. Lett.* — 2004. — Vol. 92. — P. 236802-1–236802-4.

8. **Pauc N., Calvo V., Eymery J. et al.** Electronic and optical properties of SiSiO_2 nanostructures. II. Electron-hole recombination at the SiSiO_2 quantum-well–quantum-dot transition. *Phys. Rev. B.* — 2005. — Vol. 72. — P. 205325-1–205324-8.

9. **Penn C., Schaffler F., Bauer G. et al.** Application of numerical exciton-wave-function calculations to the question of band alignment in $\text{SiSi}_{1-x}\text{Ge}_x$ quantum wells. *Phys. Rev. B.* — 1999. — Vol. 59. — P. 13314–13321.

10. **Van de Walle C.G., Martin R.M.** Theoretical calculations of hetero-junction discontinuities in the SiGe system. *Phys. Rev. B.* — 1986. — Vol. 34. — P. 5621–5634.

11. **Burbaev T.M., Bobrik E.A., Kurbatov V.A. et al.** Elektronno-dyrochnaia zhidkost' v napriazhennykh SiGe-sloiakh kremnievykh geterostruktur. *JETP.* — 2007. — T. 85. — Vyp. 7. — S. 410–413. (rus)

12. **Bagaev V.S., Zaitsev V.V., Krivobok V.S. et al.** Kanaly izluchatel'noi rekombinatsii i fazovye perekhody v sisteme neravnovesnykh nositelei v tonkoi kvantovoi iame $\text{Si}_{0.93}\text{Ge}_{0.07}/\text{Si}$. *JETP.* — 2008. — T. 134. — Vyp. 5. — S. 988–995. (rus)

13. **Baier T., Mantz U., Thonke K. et al.** Type-II band alignment in $\text{SiSi}_{1-x}\text{Ge}_x$ quantum wells from photoluminescence line shifts due to optically induced band-bending effects: Experiment and theory. *Phys. Rev. B.* — 1994. — Vol. 50. — № 20. — P. 15191–15196.

14. **Burbaev T.M., Gordeev M.N., Lobanov D.N. et al.** Elektronno-dyrochnaia zhidkost' i eksitonnye molekuly v kvazidvumernykh SiGe-sloiakh geterostruktur SiSiGeSi . *JETP Letters.* — 2010. — T. 92. — Vyp. 5. — S. 341–345. (rus)

15. **Shepel D., Burbaev T., Sibeldin N.** Quasi-two-dimensional electron-hole liquid and biexcitons in SiGe layers of SiSiGeSi heterostructures. et al. *Physica Status Solidi. C8.* — 2011. — № 4. — P. 1186–1189.

16. **Betzler K., Weller T., Conradt R.** Two-electron band-to-band transitions in solids. *Phys. Rev. B.* — 1972. — Vol. 6. — P. 1394–1399.

17. **Betzler K., Conradt R.** Two-electron transitions in the condensed phase of nonequilibrium carriers in Si. *Phys. Rev. Lett.* — 1972. — Vol. 28. — № 21. — P. 1562–1563.

18. **Schmid W.** Four-particle radiative transitions of biexcitons and multiple bound excitons in Si. *Phys. Rev. Lett.* — 1980. — Vol. 45. — P. 1726–1729.

19. **Thewalt M.L.W., McMullan W.G.** Green and near-infrared luminescence due to the biexci-

tons in unperturbed silicon. Phys. Rev. B. — 1984. — Vol. 30. — P. 6232–6234.

20. **Yang L., Watling J.R., Wilkins R.C.W. et al.** SiSiGe heterostructure parameters for device simulations. Semicond. Sci. Technol. — 2004. — Vol. 19. — P. 1174–1182.

21. **Rieger M.M., Vogl P.** Electronic-band parameters in strained $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ alloys on $\text{Si}_{1-y}\text{Ge}_y$ substrates. Phys. Rev. B. — 1993. — Vol. 48. — № 19. — P. 14276–14286.

22. **Pokrovsky Ya.E., Kaminsky A.S., Svistunova K.I.** Experimental evidences of the existence of condensed phase of non-equilibrium charge carriers in Ge and Si. Proceedings of the Tenth International Conference on the Physics of Semiconductors. — Cambridge, Mass., AEC Division of Technical Information, Springfield, Virginia. — 1970. — 504 p.

23. **Manku T., Nathan A.** Effective mass for strained *p*-type Si. J. App. Phys. — 1991. — Vol. 69. — № 12. — P. 8414–8416.

КОЗЫРЕВ Дмитрий Сергеевич — студент физического факультета Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова.

119991, г. Москва, Ленинские горы, 1
diman-mich@yandex.ru

БУРБАЕВ Тимур Маруанович — кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник отделения физики твердого тела Физического института им. П.Н. Лебедева РАН.

119991, г. Москва, Ленинский проспект, 53
burbaev@sci.lebedev.ru



МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ФИЗИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ

УДК 536.25:536.423.4

А.Г. Абрамов, Г.А. Ковалёв, Е.М. Смирнов

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ЦИРКУЛЯЦИИ ПАРОВОЗДУШНОЙ СРЕДЫ И СОПУТСТВУЮЩЕЙ КОНДЕНСАЦИИ НА РЯДЕ ВЕРТИКАЛЬНЫХ ТРУБОК

A.G. Abramov, G.A. Kovalev, E.M. Smirnov

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

NUMERICAL SIMULATION OF CIRCULATION OF STEAM-AIR MIXTURE AND FILM CONDENSATION ON SERIES OF VERTICAL TUBES

В работе представляются результаты проведенных в трехмерной стационарной постановке по методу RANS расчетов турбулентной конвекции паровоздушной смеси, совершающей циркуляционное движение в замкнутой области, при наличии пленочной конденсации пара на расположенном в центральной части бесконечном ряде охлаждаемых вертикальных трубок. Основная цель расчетов – изучение влияния расстояния между трубками на структуру течения и характеристики теплоотдачи. Изложена математическая модель исследуемых процессов, программная реализация которой расширила возможности исследовательского CFD-кода SINF. По результатам расчетов выполнен обстоятельный анализ структуры полей скорости, температуры и массовой концентрации компонентов смеси в области, а также распределений теплового потока, отводимого через поверхности трубок.

СВОБОДНАЯ КОНВЕКЦИЯ, ТЕПЛОМАСООБМЕН, ПЛЕНОЧНАЯ КОНДЕНСАЦИЯ, НЕ-КОНДЕНСИРУЮЩИЕСЯ ГАЗЫ, ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ, ТУРБУЛЕНТНОСТЬ.

The paper presents results of 3D steady-state RANS computations of turbulent convection of steam-air mixture performing a circulating motion in a confined enclosure under conditions of film condensation of steam on an infinite row of cooled vertical tubes located in the central part of enclosures. The aim of the computations is to study the influence of the distance between the tubes on the flow structure and heat transfer characteristics. Software implementation of the presented mathematical model of the processes under consideration has extended the possibilities of the in-house CFD-code SINF. On the base of the obtained computational results a comprehensive analysis of the structure of the velocity, temperature and concentration fields, as well as the distribution of the heat flux on the surfaces of the tubes is done.

FREE CONVECTION, HEAT AND MASS TRANSFER, FILM CONDENSATION, NON-CONDENSABLE GASES, NUMERICAL SIMULATION, TURBULENCE.

Сегодня повышенное внимание уделяется вопросам обеспечения безопасности действующих и проектируемых энергоблоков АЭС нового поколения, в том числе предусматривающих применение за-

щитных систем, основанных на свободно-конвективном механизме удаления теплоты распада при возникновении аварийных ситуаций [1, 2]. Конструируемые системы безопасности с пассивным принципом

действия должны в течение длительного времени обеспечивать поддержание допустимого уровня давления внутри защитной оболочки (контейнмента) при запроектной аварии, связанной с потерей теплоносителя (воды). Предполагается, что удаление водяного пара, образующегося в нижней части контейнмента и перетекающего в подкупольное помещение, происходит путем его конденсации на располагаемых в подкупольном пространстве вертикально ориентированных теплообменниках или на стенках контейнмента [2].

Пленочная конденсация пара происходит при этом в присутствии неконденсирующихся газов (водорода, выделяющегося в ходе аварии, и воздуха, содержащегося в объеме защитной оболочки), что, как известно, существенно снижает интенсивность теплоотдачи. При определяющем действии сил плавучести, у поверхностей конденсации развивается свободно- или смешано-конвективное течение, которое в реальных режимах эксплуатации носит турбулентный характер. Теплообменники, на внешней поверхности которых создаются условия для конденсации пара, обычно представляют собой ряд разнесенных, вертикально ориентированных трубчатых элементов, охлаждаемых изнутри водой.

На эффективность работы такой теплоотводящей системы в ряду других факторов могут влиять ее конструктивные особенности и, в частности, расстояние между трубками теплообменника. Нисходящие пограничные слои у поверхностей соседствующих трубок в случае малых межтрубных зазоров могут пересекаться, взаимодействовать друг с другом и с формирующимся в замкнутых объемах контейнмента циркулирующим конвективным потоком, что сказывается на структуре течения и тепломассообменных процессах. Судя по известной авторам литературе, данный вопрос до настоящего времени сколько-нибудь подробно не изучался.

Проведение натурных экспериментов в реальных условиях эксплуатации реакторов представляет собой труднореализуемую и весьма дорогостоящую задачу. На сегодняшний день наиболее доступным и перспек-

тивным инструментом для исследований по проблеме является численное моделирование на основе уравнений Навье—Стокса. Следует заметить, что соответствующие расчетные модели были введены в практику при проведении исследований относительно недавно [2, 3]. Численное моделирование выполняется либо с использованием коммерческих CFD-кодов общего назначения, либо проблемно-ориентированных солверов собственной разработки.

На кафедре гидроаэродинамики СПбГПУ с начала 1990-х годов ведутся работы по развитию программного комплекса (ПК), ориентированного на численное решение трехмерных нестационарных уравнений Навье — Стокса для областей с произвольной геометрией (ПК SINF) [4]. В течение последних нескольких лет этот код был доработан для придания ему возможностей по решению трехмерных задач свободной и смешанной конвекции парогазовой смеси с учетом поверхностной и объемной конденсации пара в присутствии неконденсирующихся газов. На основе доработанного ПК в двумерной (осесимметричной) и трехмерной постановках были получены численные решения ряда задач по рассматриваемой тематике [5–7].

Опыт приложения низкорейнольдсовых моделей турбулентности, замыкающих осредненные по Рейнольдсу уравнения Навье — Стокса (RANS), для численного предсказания интенсивности поверхностной конденсации в присутствии неконденсирующегося газа, применительно к модельной задаче свободной конвекции около вертикальной изотермической пластины представлен в [5]. В публикациях [6, 7] обсуждаются результаты расчетов свободно-конвективного течения паровоздушной смеси в замкнутой полости с пленочной конденсацией пара на центральной вертикальной трубке, проведенных в осесимметричной и трехмерной постановках для условий, приближенных к известным среди специалистов экспериментам [8].

Представляемая работа посвящена численному моделированию на основе метода RANS турбулентной конвекции паровоздушной среды, совершающей циркуляци-

онное движение в поле силы тяжести, и сопутствующей пленочной конденсации пара на боковых поверхностях бесконечного ряда охлаждаемых вертикальных трубок. Основное внимание уделяется изучению влияния расположения трубок на структуру течения и распределение теплового потока по поверхностям конденсации. Отдельные геометрические и физические параметры расчетов были заимствованы из работы [8].

Постановка задачи

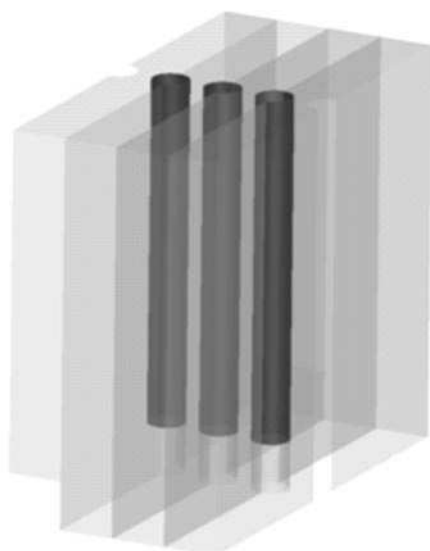
Объектом исследования является циркуляционное конвективное движение паровоздушной смеси в области, представляющей собой бесконечную камеру прямоугольного сечения, высотой 4 м и шириной 0,45 м, с помещенным в ее центральной части бесконечным рядом вертикальных цилиндрических трубок. Эти трубки расположены на одинаковом расстоянии друг от друга; на рис. 1, а показаны три трубки из рассматриваемого бесконечного ряда. На охлаждаемой внешней поверхности трубок, имеющих высоту 3,5 м и внешний радиус $R = 0,019$ м (геометрические параметры взяты из работы [8]), создаются условия для конденсации горячего пара, который поступает в объем со дна камеры. С учетом симметрии задачи в двух

пространственных направлениях, расчеты выполнялись для области, содержащей четверть окружности одной из трубок. Размер области по трансверсальной координате z (рис. 1, б) составлял $R + L/2$, где L – ширина межтрубного зазора.

Расчеты были проведены для пяти различных геометрий областей с разными значениями L , составлявшими $0,5R$, $1R$, $2R$, $4R$ и $6R$. На внешней поверхности трубки задавалось одинаковое значение температуры $T = 349,6$ К, полученное путем пространственного осреднения данных [8]. На нижней границе задавался однородный массовый поток горячего пара ($T = 383,7$ К), значение которого вычислялось для каждого из вариантов с условием одинаковости интегрального потока пара для всех пяти геометрий: он должен быть равным $1,37 \cdot 10^{-4}$ кг/с. Верхняя стенка камеры полагалась теплоизолированной. Такое же условие принималось и для боковой вертикальной стенки. На трех остальных вертикальных границах задавалось условие симметрии. Особенности постановки граничных условий на поверхности конденсации обсуждаются в следующем разделе.

Во всех расчетах начальный уровень давления в камере составлял 1,5 атм. При вычислениях стартовым считалось состоя-

а)



б)

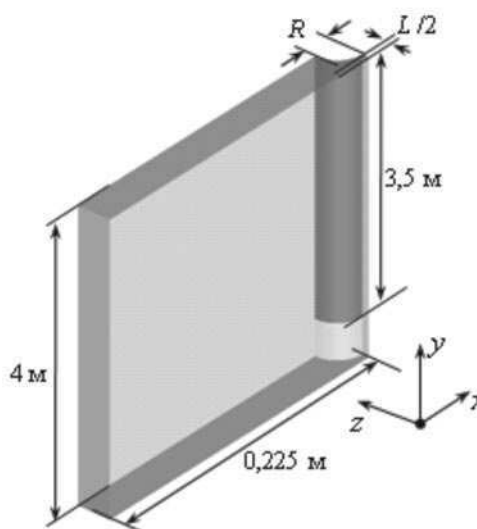


Рис. 1. Схема к постановке задачи (а) и геометрия расчетной области (б)

Физические свойства компонентов паровоздушной смеси

Компонент	M , кг/кмоль	μ , 10^{-5} Па·с	c_p , Дж/(кг·К)	Pr
Воздух	29	1,850	1010	0,71
Пар	18	0,995	2129	0,9

Обозначения: M — молекулярный вес, μ — динамический коэффициент вязкости, c_p — удельная теплоемкость, Pr — молекулярное число Прандтля.

ние покоящейся среды при однородных полях температуры (368,0 К) и массовой концентрации пара 0,44. Значения температуры на границах области и физические свойства смеси соответствовали одному из экспериментальных режимов [8].

В таблице приведены использованные в расчетах физические свойства компонентов смеси.

Математическая модель

Рассматривается низкоскоростное турбулентное конвективное течение двухкомпонентной парогазовой смеси, происходящее в поле силы тяжести. Система определяющих уравнений включает в себя уравнения баланса массы, импульса и энергии для смеси в целом, а также уравнение переноса водяного пара [9]:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{V}) = 0; \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho \mathbf{V}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{V} \mathbf{V}) = -\nabla p^* + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} + \mathbf{g}(\rho - \rho_h), \quad (2)$$

$$p^* = p - p_h, \quad \nabla p_h \equiv \rho_h \mathbf{g};$$

$$c_p \left[\frac{\partial \rho T}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{V} T) \right] = \quad (3)$$

$$= \frac{\partial p_a}{\partial t} - \nabla \cdot \mathbf{q} - (c_{p,g} \dot{\mathbf{m}}_g + c_{p,v} \dot{\mathbf{m}}_v) \cdot \nabla T;$$

$$\frac{\partial \rho y_v}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{V} y_v) = \nabla \cdot \dot{\mathbf{m}}_v; \quad (4)$$

$$y_g + y_v = 1.$$

Здесь ρ , p , $\mathbf{V}$, T — плотность, давление, скорость и температура смеси; p^* — модифицированное давление; p_h — гидростатическое давление; ρ_h — среднееобъемная плотность; p_a — среднее давление по объему смеси; c_p — удельная теплоемкость смеси; $y_i = \rho_i / \rho$ — массовые концентрации компонентов (ρ_i — парциальная плотность,

$i = 1, 2$ или v, g). Нижними индексами здесь и далее обозначены соответствующие величины для пара (v) и неконденсирующегося газа (g).

В рамках принятого приближения существенно дозвукового течения можно пренебречь преобразованием механической энергии потока во внутреннюю, поэтому в уравнении энергии (3) опущены соответствующие члены и учитывается изменение во времени лишь среднего давления p_a .

Плотность среды определяется уравнением состояния, которое для смеси совершенных газов имеет вид:

$$p = \frac{p_a}{RT(y_g / M_g + y_v / M_v)}, \quad (5)$$

где R — универсальная газовая постоянная, M_i — молекулярные веса компонентов.

Суммарный (включающий молекулярную и турбулентную составляющие) диффузионный перенос представлен в системе уравнений (1) — (4) тензором напряжений $\boldsymbol{\tau}$ и векторами плотности потока тепла $\mathbf{q}$ и массовых потоков компонентов $\dot{\mathbf{m}}_i$. Для их вычисления используются градиентные аппроксимации в форме законов Ньютона, Фурье и Фика:

$$\boldsymbol{\tau} = (\mu + \mu_t) \left(2\mathbf{S} - \frac{2}{3} (\nabla \cdot \mathbf{V}) \mathbf{I} \right); \quad (6)$$

$$\mathbf{q} = - \left(\lambda + \frac{\mu_t c_p}{Pr_t} \right) \nabla T; \quad (7)$$

$$\dot{\mathbf{m}}_i = - \left(\rho D_i + \frac{\mu_t}{Sc_t} \right) \nabla y_i, \quad (8)$$

с введением турбулентных чисел Прандтля Pr_t и Шмидта Sc_t .

Динамический коэффициент вязкости и удельная теплоемкость смеси определяют путем «взвешивания» соответствующих величин компонентов пропорционально их массовым концентрациям:

$$\begin{aligned}\mu &= y_g \mu_g + y_v \mu_v; \\ c_p &= y_g c_{p,g} + y_v c_{p,v}.\end{aligned}\quad (9)$$

Вязкость компонентов рассчитывается на основе степенной зависимости от температуры в виде:

$$\mu_i = \mu_{0,i} \cdot (T / T_0)^{0,76}, \quad (10)$$

где μ_0 — значение вязкости при базовой температуре T_0 .

Коэффициент теплопроводности смеси λ вычисляется с использованием «взвешенного» значения молекулярного числа Прандтля:

$$\lambda = \frac{\mu c_p}{Pr}, \quad Pr = y_g Pr_g + y_v Pr_v. \quad (11)$$

Для вычисления эффективных коэффициентов диффузии D_i компонентов паровоздушной смеси применяется соотношение [10]:

$$D_0 = D_1 = 2,64 \cdot 10^{-5} \frac{p_0}{p_a} \left(\frac{T}{T_0} \right)^{2,072}, \quad (12)$$

где p_0 — базовый уровень давления.

Моделирование турбулентности производится с привлечением SST-модели Ментера [11]; дополнительная генерация за счет действия сил плавучести не учитывается. Турбулентные числа Прандтля и Шмидта задавались равными 0,9.

При решении задачи с накачкой давления за счет подачи пара в замкнутый объем для определения текущего уровня давления p_a требуется дополнительное условие, выражающее интегральный баланс массы в расчетной области. В предположении герметичности объема в качестве такого условия используется условие сохранения массы воздуха, для которого уравнение переноса не решается, а массовая доля определяется вычитанием из единицы массовой доли пара. Начальная масса воздуха вычисляется при заданном начальном давлении, температуре и составе смеси, после чего на каждой итерации уровень давления корректируется, чтобы обеспечить те же значения массы воздуха при текущем распределении температуры и концентрации компонентов.

При наличии поверхностной конденсации влажного пара на охлаждаемой поверх-

ности образуется пленка конденсата, которая стекает под действием силы тяжести. В рамках принятой модели равновесной конденсации парциальное давление пара на поверхности пленки конденсата равно давлению насыщенных паров при соответствующей температуре. Связь давления пара с температурой в состоянии насыщения вычисляется с помощью аппроксимации, использованной в работе [12]. В принятом в расчетах приближении бесконечно тонкой пленки температура на границе с пленкой предполагается равной заданной температуре стенки, а продольная компонента скорости — равной нулю.

Граничное условие для массовой доли пара на поверхности пленки записывается в виде

$$\begin{aligned}y_{v,\delta} &= y_s = \frac{\rho_s}{\rho} = \frac{p_s}{p_a} \cdot \frac{M_v}{M} = \\ &= \left(1 + \frac{M_g}{M_v} \cdot \frac{p_a - p_s}{p_s} \right)^{-1}; \quad \rho_s = \frac{p_s M_v}{RT},\end{aligned}\quad (13)$$

где индекс δ отвечает поверхности пленки.

Полный (включающий конвективную и диффузионную составляющие) массовый поток $\dot{m}_\Sigma$ влаги, уходящей в пленку, равен массовому потоку смеси. Граничное условие для нормальной составляющей скорости $V_{n,\delta}$ на поверхности пленки может быть записано следующим образом:

$$\begin{aligned}\dot{m}_\Sigma &= \rho y_{v,\delta} V_{n,\delta} - \rho D_v \left(\frac{\partial y_v}{\partial n} \right)_\delta = \rho V_{n,\delta} \Rightarrow \\ \Rightarrow V_{n,\delta} &= - \frac{D_v}{1 - y_{v,\delta}} \left(\frac{\partial y_v}{\partial n} \right)_\delta.\end{aligned}\quad (14)$$

Полный тепловой поток q_Σ на стенке обусловлен переносом тепла за счет теплопроводности и выделением тепла при конденсации пара:

$$q_\Sigma = q_{n,\delta} + q^{cond} = -\lambda \left(\frac{\partial T}{\partial n} \right)_\delta + r \rho V_{n,\delta}, \quad (15)$$

где r — удельная теплота парообразования.

Вычислительные аспекты

Расчеты проведены в трехмерной стационарной постановке на базе метода RANS с использованием исследовательского программного CFD-комплекса (ПК) SINF

(Supersonic to INcompressible Flows) [4]. Применительно к рассматриваемому классу течений ПК позволяет моделировать свободную и смешанную конвекцию воздуха в его смеси с водяным паром и/или другими сопутствующими неконденсирующимися газами.

Пространственная дискретизация уравнений в ПК SINF осуществляется по методу контрольного объема со вторым порядком точности. Для получения нестационарных решений применяется неявная схема второго порядка по физическому времени. На каждой итерации вычислительного процесса производится линеаризация системы, которая является результатом дискретизации исходных дифференциальных уравнений. Решение полученной системы линейных алгебраических уравнений выполняется с помощью методов, основанных на подпространствах Крылова (сопряженных/бисопряженных градиентов с предобуславливанием). Для нахождения поля давления, которое бы обеспечивало выполнение баланса массы в низкоскоростных потоках, используется подход, базирующийся на методе SIMPLEC и предполагающий решение уравнения Пуассона, сконструированного специальным образом. Параллелизация кода выполнена на основе метода декомпозиции расчетной области на блоки и применения библиотеки MPI для обеспечения межблочного обмена данными.

Размерность расчетных сеток для пяти вариантов расчетов находилась в пределах от 440 до 920 тыс. ячеек с выполнением условия $y^+ \leq 1$ для нормированного расстояния до стенки в первой расчетной точке у поверхности трубки. Метод RANS с использованием модели турбулентности SST Менстера позволил получить сошедшиеся решения для всех рассчитанных вариантов. Следует отметить, что для обсуждаемой задачи характерен крайне длительный переходный процесс, во время которого происходит развитие течения в объеме и устанавливается некоторый уровень давления, а также выходят на стационарный уровень значения среднеобъемных плотности, температуры и массовых долей компонентов смеси.

Расчеты выполнялись на вычислительном кластере, состоящем из набора однотипных восьмиядерных узлов.

Результаты расчетов

Структура течения в полости. Особенности структуры течения представлены на рис. 2, *a–в* картинами линий тока, а также распределениями изолиний температуры и массовой доли пара в поперечном вертикальном сечении расчетной области (для варианта с $L = 1R$).

Рассчитанные картины полей аналогичны для всех рассмотренных геометрий. В полости формируется циркуляционное турбулентное течение конвективной природы с выраженными неоднородностями в полях физических величин. Горячий насыщенный пар, поступая в объем с нижней границы, поднимается вверх преимущественно вдоль боковой стенки камеры, смешивается с более тяжелым воздухом и постепенно остывает. Затем паровоздушная смесь перетекает в горизонтальном направлении к центральной части полости и далее стекает вниз вдоль холодной поверхности трубки, на которой происходит конденсация пара. Интенсивность этого глобального движения несколько уменьшается с увеличением расстояния между трубками. Вблизи верхней теплоизолированной стенки формируется относительно небольшая зона локальной рециркуляции потока. Высокоградиентные области локализованы у поверхности конденсации и в нижней части полости.

На рис. 2, *г, д* для того же варианта показаны изолинии полей вертикальной скорости и массовой доли пара в вертикальном сечении между трубками, проходящем через их центр (для наглядности картины отражены относительно плоскости симметрии). Видно, что пограничные слои с преобладающим содержанием воздуха, которые формируются у поверхностей трубок, взаимодействуют с сопутствующим нисходящим внешним потоком глобальной циркуляции. Скорость спутного потока заметно возрастает по мере развития течения, достигая для данного варианта значений 1 м/с. Таким образом, можно говорить о смешанно-конвективном характере тече-

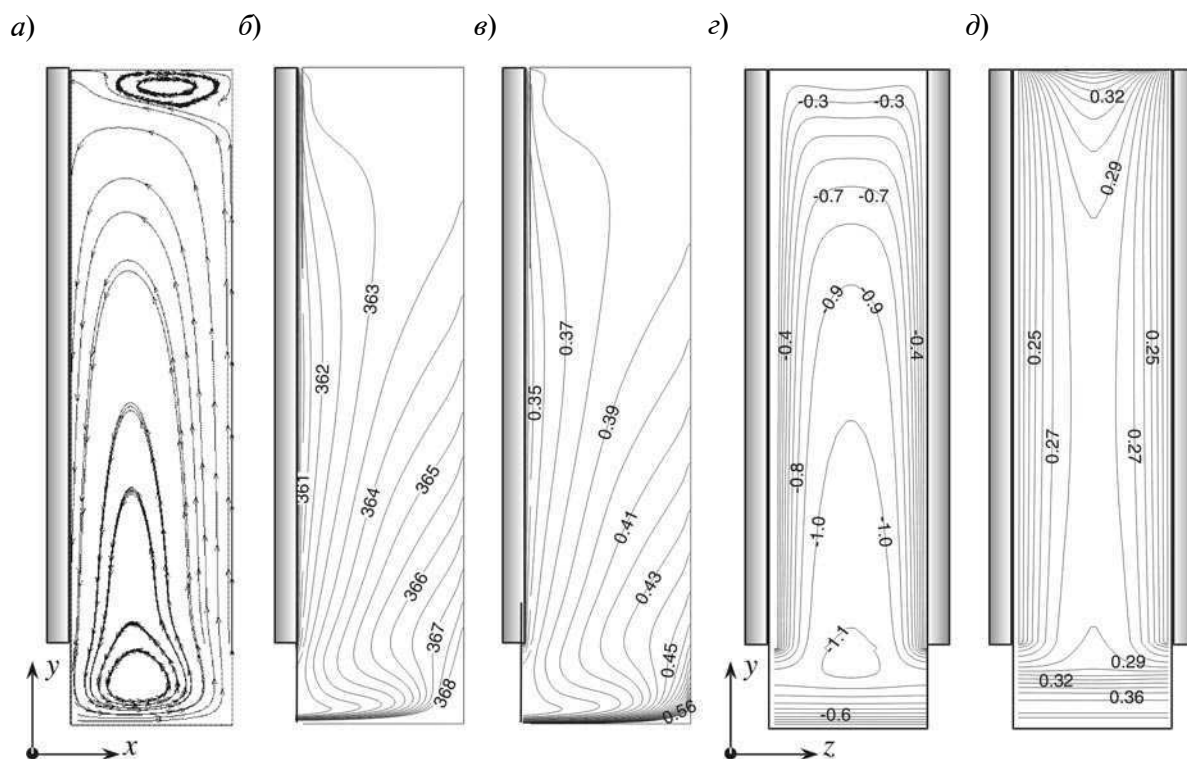


Рис. 2. Результаты моделирования циркуляции паровоздушной среды для поперечного вертикального сечения объема расчетной области (а – в) и сечения между трубками (з, д): линии тока (а); изолинии температуры (б), массовой доли пара (в, д) и вертикальной скорости (з). Масштабы по оси y составляют 1 : 5 (а–в) и 1 : 50 (з, д)

ния в пространстве между трубками.

На рис. 3 приведены горизонтальные профили вертикальной скорости в межтрубном пространстве в направлении оси z ; линейная координата изменяется от значения R на стенке до половинного расстояния между трубками (индивидуального для каждого из вариантов). Профили построены для всех рассчитанных вариантов и при трех значениях вертикальной координаты y , отсчитываемой от нижнего края трубки. Видно, что отличия в профилях скорости весьма существенны. Для вариантов с далеко отстоящими трубками в верхней части камеры пристенная кольцевая струя сопутствует с менее скоростным внешним потоком. При стекании потока вниз профиль перестраивается таким образом, что вертикальная скорость монотонно возрастает от нуля на стенке до некоторого значения на удалении от нее. В результате формируется почти однородный по трансверсальной

координате поток, занимающий значительную часть межтрубного пространства. Расчеты для наименьшего расстояния между трубками показывают, что скоростные пограничные слои, смыкаясь, взаимодействуют друг с другом и оказывают тем самым общее тормозящее действие на течение и, как показано ниже, существенно влияют на распределение теплового потока по поверхности конденсации.

Теплоотдача на поверхности конденсации. Обратимся теперь к результатам для распределений плотности суммарного теплового потока по поверхности конденсации (рис. 4, а, б). Видно, что тепловой поток существенно неоднороден и характер его распределения заметно отличается для разных геометрий. На поверхностях трубок хорошо видны светлые пятна, отвечающие относительно малым значениям отводимого теплового потока. Каждая эта «проблемная» область, особенно выраженная для ва-

риантов с малым межтрубным расстоянием, расположена на части поверхности, развернутой в направлении соседней трубки, где в узком пространстве происходит взаимодействие пограничных слоев с глобальной циркуляцией. Наибольшие значения теплового потока наблюдаются в узком кольце в верхней части трубки, а также в ее нижней части на участках стенки, ориентированных в направлении, перпендикулярном оси, где

расположен ряд трубок. Градиент теплового потока по поверхности тем сильнее, чем меньше расстояние между трубками.

Кривые, отражающие изменение рассчитанной плотности теплового потока по высоте трубки, показаны на рис. 4, в: представлены данные, полученные в результате осреднения по периметру трубки при фиксированном значении вертикальной координаты. Здесь следует подчеркнуть, что интегральный тепловой поток, связанный с конденсацией пара на поверхности охлаждения, более чем в 20 раз превышает величину диффузионного потока, внося тем самым основной вклад в процесс теплоотдачи. Тепловой поток меняется по высоте немонотонно: при движении от верхнего края трубки плотность потока сначала резко уменьшается до своего минимального значения, а затем начинает медленно возрастать, совместно с развитием турбулентных пограничных слоев у поверхности конденсации. При этом наиболее плавный рост наблюдается в расчетах для малых межтрубных зазоров.

В заключение следует отметить, что во всех рассмотренных вариантах установившийся расчетный уровень давления в камере практически одинаков. Такой результат есть следствие принятого предположения об однородности распределения температуры по поверхности конденсации. Эффективность работы реальных теплообменников зависит, однако, и от термического сопротивления между внешней поверхностью трубки и протекающей внутри нее охлаждающей средой. Из-за указанного термического сопротивления неоднородности теплового потока, возникающие за счет взаимодействия трубок, влекут за собой и существенные неравномерности в распределении температуры по поверхности конденсации. Тем самым условия для конденсации на стенке становятся «нефиксированными», а это сказывается на среднеобъемной концентрации и устанавливаемом уровне давления. Соответствующее расширение рассмотренной задачи, которое бы учитывало отмеченную сопряженность, представляет собой предмет дальнейших исследований.

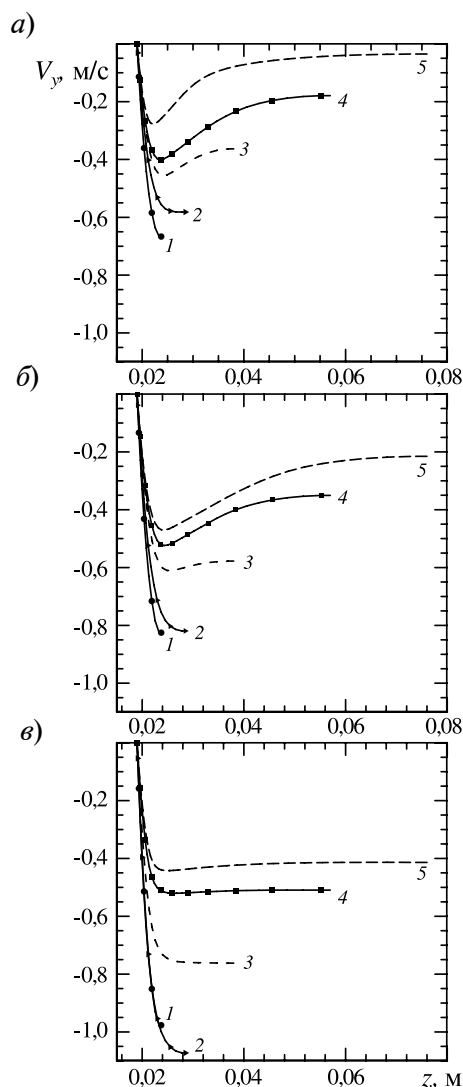


Рис. 3. Результаты моделирования циркуляции паровоздушной среды для горизонтальных профилей вертикальной скорости в межтрубном пространстве для разных значений координаты y , м: 3,0 (а), 2,5 (б), 0,5 (в), а также разной ширины межтрубного зазора L : 0,5R (1), 1R (2), 2R (3), 4R (4), 6R (5)

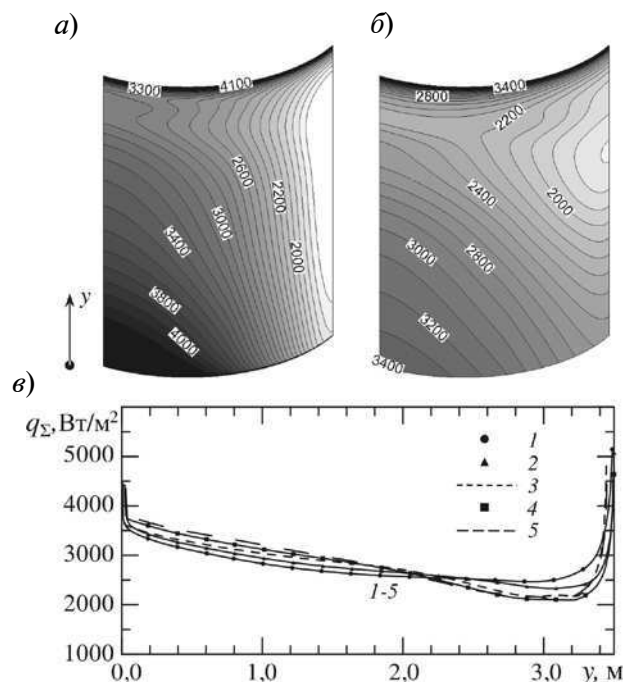


Рис. 4. Расчетные распределения плотности теплового потока ($\text{Вт}/\text{м}^2$) по поверхности (а, б) и высоте (в) трубок для разных значений ширины межтрубного зазора L : $0,5R$ (1), $1R$ (2, а), $2R$ (3), $4R$ (4, б), $6R$ (5); в – по вертикальной оси отложено осредненное по окружному направлению значение q

Итак, проведено численное моделирование турбулентной конвекции паровоздушной смеси в замкнутой камере, где в ее центральной части помещен ряд вертикальных цилиндрических трубок, на которых происходила конденсация пара. Расчеты выполнялись по методу RANS в трехмерной стационарной постановке для пяти геометрий расчетных областей с изменяющимся расстоянием между трубками. Установлено, что для всех рассмотренных конфигураций в камере формируется интенсивное турбулентное циркуляционное течение, инициированное эффектами плавучести

и поверхностной конденсации. В зазорах между трубками течение носит смешанно-конвективный характер, пограничные слои взаимодействуют с сопутствующим нисходящим потоком глобальной циркуляции. Показано, что структура течения в окрестности трубок, а также степень неоднородности теплового потока на их поверхности весьма чувствительны к ширине межтрубного интервала.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант №11-08-00590).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бахметьев, А.М. Экспериментальные исследования теплоотдачи при конденсации пара из паровоздушной смеси на теплообменной поверхности системы снижения аварийного давления в защитной оболочке [Текст] / А.М. Бахметьев, М.А. Большухин, А.М. Хизбуллин, М.А. Камнев // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2011. – № 4. – С. 64–71.
2. Семашко, С.Е. Расчетно-экспериментальное моделирование процессов в защитной оболочке при наличии пассивного конденсато-

- ра в системе пассивного отвода тепла [Текст] / С.Е. Семашко, В.В. Безлепки, М.А. Затевахин, О.И. Симакова, И.М. Ивков // Атомная энергия. – 2010. – Т. 108. – № 5. – С. 308–312.
3. De la Rosa, J.C. Review on condensation on the containment structures [Text] / J.C. De la Rosa, A. Escrivá, L.E. Herranz, [et al.] // Progress in Nuclear Energy. – 2009. – Vol. 51. – P. 32–66.
4. Смирнов, Е.М. Метод конечных объемов в приложении к задачам гидрогазодинамики и теплообмена в областях сложной геометрии

[Текст] / Е.М. Смирнов, Д.К. Зайцев // Научно-технические ведомости СПбГПУ. — СПб.: Изд-во Политехн. ун-та, — 2004. — № 2 (36). — С. 70–81.

5. **Смирнов, Е.М.** О применении современных дифференциальных моделей турбулентности для расчета поверхностной конденсации в условиях свободной конвекции паровоздушной среды [Текст] / Е.М. Смирнов, А.Г. Абрамов, Е.Ю. Кумзерова, П.Е. Смирнов // Научные исследования и инновационная деятельность: материалы научно-практ. конф. — СПб.: Изд-во Политехн. ун-та, 2008. — С. 83–89.

6. **Смирнов, Е.М.** Численное моделирование тепломассообмена при пленочной конденсации водяного пара на вертикальной трубке в условиях циркулирующего турбулентного движения паровоздушной среды [Текст] / Е.М. Смирнов, А.Г. Абрамов, П.Е. Смирнов // Научные исследования и инновационная деятельность: материалы научно-практ. конф. — СПб.: Изд-во Политехн. ун-та, 2009. — С. 70–76.

7. **Абрамов, А.Г.** Численное моделирование турбулентной свободной конвекции паровоздушной среды в замкнутой полости при наличии пленочной конденсации на центральной вертикальной трубке [Текст] / А.Г. Абрамов, Е.М.

Смирнов // Труды V Рос. нац. конф. по теплообмену. — М.: Издательский дом МЭИ, 2010. — Т. 3. — С. 33–36.

8. **Dehby, A.A.** Condensation experiments in steam-air steam-helium mixture under turbulent natural convection [Text] / A.A. Dehbi, M.W. Golay, M.S. Kazimi // National Conference of Heat Transfer, AIChE Symp. — 1991. — № 87 (283). — P. 19–28.

9. **Лапин, Ю.В.** Внутренние течения газовых смесей [Текст] / Ю.В. Лапин, М.Х. Стрелец. — М.: Наука, 1989. — 368 с.

10. **Lienhard, J.H.** IV A heat transfer text book [Text] / J.H. IV Lienhard, J.H. V Lienhard; 3rd edition. — Massachusetts, USA: Phlogiston Press Cambridge. — 2006. — 750 p.

11. **Menter, F.R.** Ten years of Industrial Experience with the SST turbulence model [Электронный ресурс] / F.R. Menter, R. Langtry, M. Kuntz // Turbulence, Heat and Mass Transfer IV, Antalya, Turkey, 12–17 October, 2003. — CD-ROM proc. — Begell House, Inc., 2003. — 8 p.

12. **IAPWS.** Revised Supplementary Release on Saturation Properties of Ordinary Water Substance [Электронный ресурс] // The International Association for the Properties of Water and Steam, St. Petersburg, Russia. September 1992. — Режим доступа <http://www.iapws.org>.

REFERENCES

1. **Bakhmetyev A.M., Bolshukhin M.A., Hizbulin A.M., Kamnev M.A.** Experimental investigations of heat transfer for the case with steam condensing from the steam-air mixture on the heat-exchange surface of the containment emergency pressure reduction system. Proceedings of the Higher Educational Institutions. Nuclear Power Engineering. — 2011. — № 4. — S. 64–71. (rus)

2. **Semashko S.E., Bezlepkin V.V., Zatevakhin M.A., Simakova O.I., Ivkov I.M.** Numerical and experimental studies of processes in the containment in the presence of passive condenser in the passive heat-removal system. Atomic Energy. — 2010. — T. 108. — № 5. — P. 335–342. (rus)

3. **De la Rosa J.C., Escrivá A., Herranz L.E., Cicero T., Munoz-Cobo J.L.** Review on condensation on the containment structures. *Progress in Nuclear Energy*. — 2009. — Vol. 51. — P. 32–66.

4. **Smirnov E.M., Zaitsev D.K.** Finite volume method as applied to problems of fluid dynamics and heat transfer in domains of complex geometry. St. Petersburg State Polytechnical University Journal. — 2004. — № 2 (36). — S. 70–81. (rus)

5. **Smirnov E.M., Abramov A.G., Kumzerova E.Yu., Smirnov P.E.** On the application of up-to-date differential turbulence models for computation of film condensation under free convection

of steam-air mixture. Proc. Scientific and Practical Conference «Scientific research and innovation activities», St.-Petersburg, Polytechnical University Publishing House, 2008. —S. 83–89.

6. **Smirnov E.M., Abramov A.G., Smirnov P.E.** Numerical simulation of heat and mass transfer at film condensation of water vapour on a vertical tube in conditions of circulating turbulent motion of steam-air mixture. Proc. Scientific and Practical Conference «Scientific research and innovation activities». St.-Petersburg, Polytechnical University Publishing House, 2009. —S. 70–76. (rus)

7. **Abramov A.G., Smirnov E.M.** Numerical simulation of turbulent free convection of steam-air mixture in confined enclosure at film condensation on a central vertical tube. Proc. V Russian National Heat Mass Transfer Conference, Moscow, Publishing House MPEI, 2010. —T. 3. — S. 33–36. (rus)

8. **Dehbi A.A., Golay M.W., Kazimi M.S.** Condensation experiments in steam-air steam-helium mixture under turbulent natural convection. National Conference of Heat Transfer, AIChE Symp. — 1991. — № 87 (283). — P. 19–28.

9. **Lapin Yu.V., Strelets M.Kh.** Vnutrennie tekhnologii gazovykh smesey. — Moscow: Nauka. — 1989. —368 p. (rus)

10. **Lienhard IV J.H., Lienhard V J.H.** A heat



transfer text book, 3rd edition. Phlogiston Press, Cambridge, Massachusetts, USA. — 2006. — 750 p.

11. **Menter F.R., Langtry R., Kuntz M.** Ten years of Industrial Experience with the SST turbulence model. Turbulence, Heat and Mass Transfer IV, Antalya, Turkey, 12-17 October, 2003, CD-

ROM proc., Begell House, Inc., 2003. — 8 p.

12. **IAPWS.** Revised Supplementary Release on Saturation Properties of Ordinary Water Substance. The International Association for the Properties of Water and Steam, St.-Petersburg, Russia. September 1992. Available at: <http://www.iapws.org>.

АБРАМОВ Алексей Геннадьевич — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры гидроаэродинамики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

(812) 297-24-19

aero@phmf.spbstu.ru

СМИРНОВ Евгений Михайлович — доктор физико-математических наук, профессор, заведующий кафедрой гидроаэродинамики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

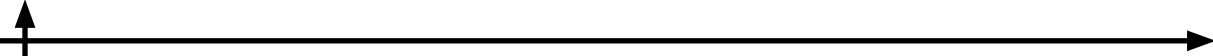
(812) 297-24-19

aero@phmf.spbstu.ru

КОВАЛЁВ Гордей Александрович — студент Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

aero@phmf.spbstu.ru



АТОМНАЯ ФИЗИКА, ФИЗИКА КЛАСТЕРОВ И НАНОСТРУКТУР

УДК 537.56, 544.18

А.В. Верховцев, А.В. Король, А.В. Соловьёв

ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ЭЛЕКТРОННЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ ПРИ ФОТОИОНИЗАЦИИ НАНОРАЗМЕРНЫХ УГЛЕРОДНЫХ СОЕДИНЕНИЙ

A.V. Verkhovtsev¹, A.V. Korol², A.V. Solov'yov¹

¹ St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Polytechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

² St. Petersburg State Maritime Technical University,
101 Leninskii Ave., St. Petersburg, 198262, Russia.

THEORETICAL INVESTIGATION OF ELECTRON EXCITATIONS IN PHOTOIONIZATION OF NANOSCALE CARBON-BASED SYSTEMS

Представлены результаты исследования электронных возбуждений, возникающих при фотоионизации различных углеродных наносистем. В качестве примера рассмотрен ряд высокосимметричных фуллеренов, а именно молекулы C_{20} , C_{60} и C_{80} , а также ароматические углеводороды: бензол C_6H_6 и коронен $C_{24}H_{12}$. Расчеты проведены в рамках модельного подхода, основанного на плазмонном резонансном приближении, а также с использованием квантовохимических методов из первых принципов. Сравнительный анализ результатов показывает, что основной вклад в сечение фотоионизации углеродных наносистем вносят плазмоны – коллективные возбуждения делокализованных электронов. Результаты модельного расчета находятся в хорошем согласии с результатами более точных вычислений, а также согласуются с имеющимися экспериментальными данными.

ФУЛЛЕРЕН, АРОМАТИЧЕСКИЙ УГЛЕВОДОРОД, ПЛАЗМОН, ЭЛЕКТРОННЫЕ ВОЗБУЖДЕНИЯ, МЕТОДЫ ИЗ ПЕРВЫХ ПРИНЦИПОВ, ПЛАЗМОННОЕ РЕЗОНАНСНОЕ ПРИБЛИЖЕНИЕ, ФОТОИОНИЗАЦИЯ.

We present the results of investigation of electron excitations in various carbon-based nanoscale systems in the process of photoionization. As a case in point, we consider a number of highly symmetric fullerenes, namely C_{20} , C_{60} and C_{80} , as well as aromatic hydrocarbons: benzene (C_6H_6) and coronene ($C_{24}H_{12}$). The calculations are performed within the model approach, based on the plasmon resonance approximation, and the *ab initio* framework as well. Analysis of the results demonstrates that the main contribution to the photoionization spectra of nanoscale carbon systems is due to collective excitations of delocalized electrons, known as plasmons. Results of the model-based calculations are in close agreement with those of the more accurate quantum-chemical calculations and correspond also to the existing experimental data.

FULLERENE, AROMATIC HYDROCARBON, PLASMON, ELECTRON EXCITATIONS, AB INITIO METHODS, PLASMON RESONANCE APPROXIMATION, PHOTOIONIZATION.

В течение нескольких последних десятилетий динамика электронных возбуждений и динамические процессы в различных

наноразмерных углеродных соединениях являлись объектом интенсивных экспериментального и теоретического исследова-



ний [1–3]. Особое внимание уделялось изучению процессов ионизации углеродных наносистем при столкновении с фотонами, электронами, а также ионами [3–12].

Процесс ионизации наносистем представляет собой комплексное явление, включающее в себя серию процессов различной природы, которые могут быть изучены с помощью различных теоретических методов. Будучи по своей природе квантовым явлением, процесс ионизации может быть описан посредством методов из первых принципов (*ab initio*), основанных, например, на нестационарной теории функционала плотности (TDDFT) [13]. Однако известно, что ионизация различных наноразмерных систем, таких как металлические кластеры, наночастицы и некоторые углеродные соединения, происходит посредством плазмонов — коллективного возбуждения делокализованных электронов, вызванного взаимодействием с внешним электрическим полем. Плазмонные возбуждения, представляющие собой коллективные осцилляции электронной плотности относительно положительно заряженного ионного остова [14, 15], широко известны в классической электродинамике и описываются в рамках классической физики [14–16].

Большое количество углеродных соединений, например таких, как фуллерены C_n и ароматические углеводороды C_nH_m , образуются за счет гибридизации атомных орбиталей углерода. При гибридизации в системе образуется два типа молекулярных орбиталей: σ - и π -орбитали, расположенные, соответственно, в плоскости планарного соединения (или вдоль поверхности воображаемой сферы фуллерена) либо перпендикулярно к ней [17, 18]. Два типа орбиталей заполняются, соответственно, σ - и π -делокализованными электронами, которые принимают участие в формировании коллективных возбуждений. Наибольший вклад в сечения ионизации таких наносистем вносят коллективные возбуждения с энергий около 20 эВ, которые формируются за счет как σ -, так и π -электронов и проявляются в спектрах ионизации в виде заметных резонансных структур. Как правило, спектры ионизации характеризуют-

ся также одним или несколькими менее выраженными пиками, расположенными при меньших энергиях возбуждения (менее 10 эВ) вблизи порогов ионизации систем. Такие низкоэнергетические пики связаны с коллективным возбуждением только π -электронов систем.

В большинстве случаев расчет спектров ионизации в рамках подхода *ab initio* может быть выполнен в широком диапазоне энергий возбуждения только для небольших молекул или кластеров, состоящих из нескольких атомов. Для больших систем, например таких, как фуллерены, большинство современных компьютерных пакетов для вычислений *ab initio* позволяют описать только довольно ограниченное число низколежащих возбужденных состояний, расположенных вблизи порога ионизации системы. Определение детальной структуры спектров в области больших энергий возбуждения, где плазмонные возбуждения вносят доминирующий вклад, является довольно затруднительной задачей ввиду существенных вычислительных затрат.

Эффективный способ оценки вклада плазмонных возбуждений в спектры ионизации основан на плазмонном резонансном приближении [19–21]. Основное преимущество данного подхода состоит в том, что он дает четкое физическое объяснение резонансных структур в сечениях фотоионизации [15, 23] и неупругого рассеяния электронов [12, 19–22] на основе возбуждения плазмонов фотонным или электронным ударом.

Данная работа посвящена изучению спектров фотоионизации различных углеродных наносистем. В частности, рассматривается ряд высокосимметричных фуллеренов, C_{20} , C_{60} и C_{80} , а также некоторые планарные ароматические углеводороды. В качестве примера рассматривается простейшее ароматическое соединение — молекула бензола C_6H_6 , а также один из полициклических ароматических углеводородов — коронен $C_{24}H_{12}$ (также известный как супербензол), состоящий из шести бензольных колец. Спектры фотоионизации, полученные в рамках плазмонного резонансного приближения, сравниваются со спектра-

ми, вычисленными на основе методов из первых принципов. В работе показано, что модельный подход дает хорошее согласие с результатами более точных вычислений, а также согласуется с имеющимися экспериментальными данными по фотоионизации углеродных систем. В работе используется атомная система единиц: $m = |e| = \hbar = 1$.

Нестационарная теория функционала плотности

В данной работе для точного расчета спектров ионизации исследуемых систем используется метод, основанный на нестационарной теории функционала плотности (TDDFT) [13]. Являясь обобщением стационарной теории функционала плотности (DFT) [24], метод TDDFT оперирует зависящими от времени уравнениями Кона–Шэма [13] и позволяет изучить временную зависимость различных одночастичных свойств многоэлектронной системы.

Расчеты, основанные на методах из первых принципов, проведены в линейном режиме в рамках дипольного приближения. Теория линейного отклика позволяет изучить вариацию данной физической величины при приложении слабого внешнего возмущения к многоэлектронной системе. В рамках такого подхода внешний потенциал, действующий на систему, может быть представлен как сумма стационарного вклада $v_{ext}^0(\mathbf{r})$ и возмущения $v'_{ext}(\mathbf{r}, t)$, зависящего от времени:

$$v_{ext}(\mathbf{r}, t) = v_{ext}^0(\mathbf{r}) + v'_{ext}(\mathbf{r}, t). \quad (1)$$

Приложение внешнего возмущения приводит к вариации электронной плотности системы. Таким образом, временная эволюция электронной плотности может быть представлена как сумма двух слагаемых, а именно

$$\rho(\mathbf{r}, t) = \rho_0(\mathbf{r}) + \delta\rho(\mathbf{r}, t),$$

где $\rho_0(\mathbf{r})$ — распределение плотности, соответствующее основному состоянию системы, а $\delta\rho(\mathbf{r}, t)$ описывает вариацию электронной плотности, вызванную возмущением $v'_{ext}(\mathbf{r}, t)$.

Для удобства вычисления спектров ионизации отклик системы на внешнее воз-

мущение рассматривается не во временном, а в частотном представлении. Для этого необходимо провести преобразование Фурье зависящих от времени величин. В линейном режиме Фурье-образ $\delta\rho(\mathbf{r}, t)$ выглядит следующим образом:

$$\delta\rho(\mathbf{r}, \omega) = \int \chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) v'_{ext}(\mathbf{r}', \omega) d\mathbf{r}', \quad (2)$$

где $v'_{ext}(\mathbf{r}', \omega)$ — Фурье-образ внешнего возмущения $v'_{ext}(\mathbf{r}, t)$, а $\chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ — обобщенная восприимчивость системы.

В случае внешнего возмущения

$$v'_{ext}(\mathbf{r}, \omega) = -\mathbf{E}(\omega) \cdot \mathbf{r},$$

создаваемого однородным электрическим полем, Фурье-образ наведенного дипольного момента записывается в следующем виде:

$$d_i(\omega) = \sum_j \alpha_{ij}(\omega) E_j(\omega), \quad (3)$$

где индексы i, j обозначают декартовы компоненты; $\alpha_{ij}(\omega)$ есть тензор динамической поляризуемости, описывающий линейный отклик диполя на внешнее электрическое поле:

$$\alpha_{ij}(\omega) = -\int r_i \chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) r'_j d\mathbf{r} d\mathbf{r}', \quad (4)$$

а r_i, r'_j есть компоненты радиус-векторов $\mathbf{r}$ и $\mathbf{r}'$.

Сечение фотоионизации выражается через мнимую часть $\alpha_{ij}(\omega)$ при помощи соотношения

$$\sigma(\omega) = \frac{4\pi\omega}{3c} \sum_j \text{Im} \alpha_{jj}(\omega), \quad (5)$$

где c — скорость света; суммирование проводится по диагональным элементам тензора поляризуемости.

В рамках метода, предложенного в работах [25, 26], вариация электронной плотности $\delta\rho(\mathbf{r}, \omega)$ выражается через так называемый оператор Лиувилля L :

$$(\omega - L) \cdot \delta\rho(\mathbf{r}, \omega) = [v'_{ext}(\mathbf{r}, \omega), \rho_0], \quad (6)$$

действие которого на вариацию $\delta\rho(\mathbf{r}, \omega)$ определяется как

$$L \cdot \delta\rho(\mathbf{r}, \omega) = [H_0, \delta\rho(\mathbf{r}, \omega)] + [v'_H(\mathbf{r}, \omega), \rho_0] + [v'_{xc}(\mathbf{r}, \omega), \rho_0], \quad (7)$$

где H_0 — одночастичный гамильтониан основного состояния системы, вычис-

ленного в рамках теории функционала плотности; $v'_H(\mathbf{r}, \omega)$, $v'_{xc}(\mathbf{r}, \omega)$ — линейные вариации электростатического и обменно-корреляционного потенциалов, соответственно [26].

В таком случае тензор поляризуемости $\alpha_{ij}(\omega)$ выражается через недиагональный матричный элемент резольвенты оператора Лиувилля L :

$$\alpha_{ij}(\omega) = -\langle r_i | (\omega - L)^{-1} \cdot [r_j, \rho_0] \rangle, \quad (8)$$

который вычисляется с помощью рекурсивного метода Ланцоша. Детали данного метода подробно описаны в работах [26, 27].

Плазмонное резонансное приближение

Для оценки вклада плазменных возбуждений в сечение ионизации углеродных наносистем в работе применяется следующий модельный подход. Исследуемые соединения представляются в виде центрально-

симметричных систем, в которых заряд равномерно распределен по сферическому слою (в случае фуллеренов) или по кольцу (для исследуемых углеводов) конечной толщины

$$\Delta R = R_2 - R_1,$$

где $R_{1,2}$ — внутренний и внешний радиусы слоя, соответственно [12, 28 – 30].

Оптимизированная геометрия основного состояния соединений, полученная на основе методов *ab initio*, представлена для сравнения на рис. 1.

Поскольку во всех исследуемых соединениях, за исключением коронена, атомы углерода практически равноудалены от геометрического центра системы (см. рис. 1), для их описания в модельном приближении толщина слоя ΔR выбрана равной 1,5 Å, что примерно соответствует размеру атома углерода [29]. Коронен (рис. 1, д) в рамках

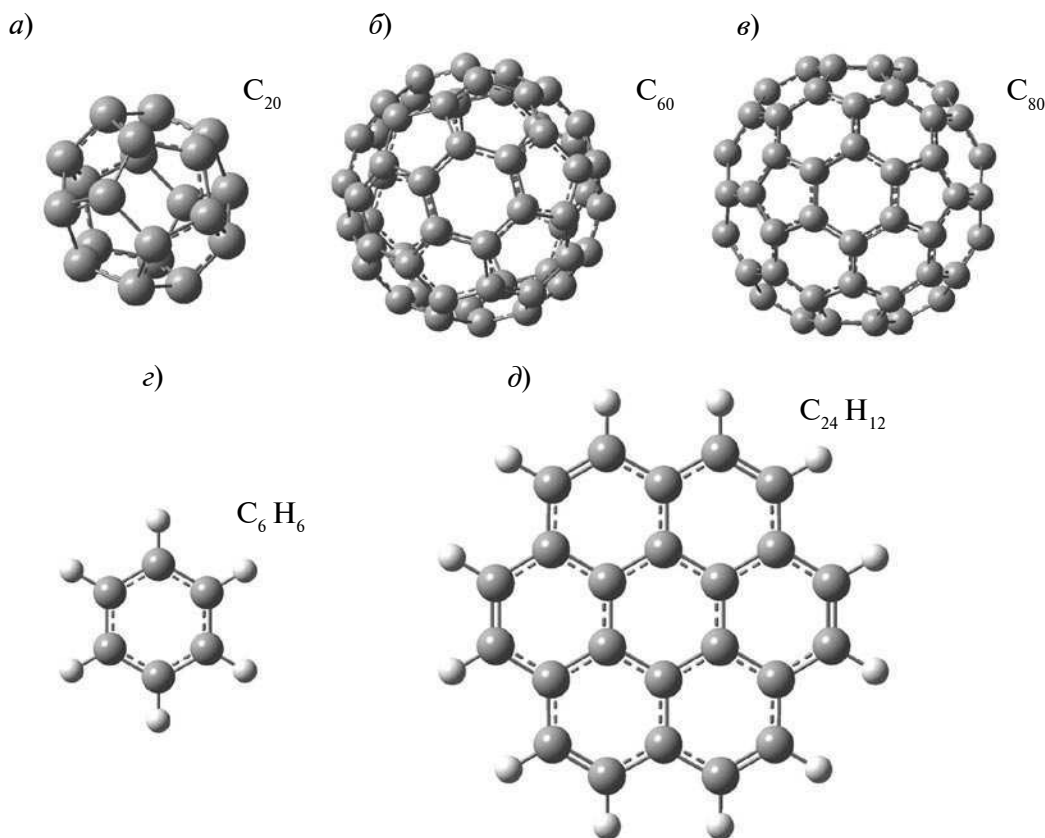


Рис. 1. Оптимизированная геометрия основного состояния фуллеренов C_{20} (а), C_{60} (б), C_{80} (в), а также ароматических углеводов: бензола C_6H_6 (е) и коронена $C_{24}H_{12}$ (д); вычислена при помощи методов из первых принципов

модельного подхода описывается как отрицательно заряженное кольцо большей толщины, $\Delta R = 3,4 \text{ \AA}$, чтобы тем самым правильно смоделировать геометрию системы.

За счет взаимодействия с однородным внешним полем $E(\omega)$ на внешней и внутренней поверхностях заряженного слоя возникает вариация электронной плотности $\delta\rho(\mathbf{r}, \omega)$. Эта вариация приводит к возникновению поверхностного плазмона, который имеет две нормальные моды: симметричную и антисимметричную [23, 28–30]. В работах [15, 16, 23] было показано, что в системе, взаимодействующей с однородным внешним электрическим полем, как это происходит при фотоионизации, может возникнуть только поверхностный плазмон. Однако при взаимодействии системы с неоднородным электрическим полем, создаваемом, например, при столкновениях с заряженными частицами, в системе также может возникнуть так называемый объемный плазмон [31] за счет локального перераспределения электронной плотности внутри заряженного сферического слоя [22].

В рамках плазмонного резонансного приближения [19–21] подразумевается, что основной вклад в сечение ионизации вносят коллективные электронные возбуждения. Одночастичные возбуждения не учитываются в приближении, поскольку одночастичные эффекты дают малый вклад по сравнению с коллективными модами [20, 31].

В рамках данного подхода динамическая поляризуемость $\alpha(\omega)$ характеризуется резонансным поведением в области частот, где преимущественно возбуждаются коллективные электронные моды. Резонансные пики в спектрах ионизации характеризуются некоторыми характерными значениями ширин, которые имеют квантовую природу и возникают за счет распада коллективной моды на некогерентную сумму одноэлектронных возбуждений [3]. Учитывая вклад π - и $(\sigma + \pi)$ -плазмонов, которые создаются, соответственно, только π - или σ - и π -делокализованными электронами углеродных наносистем, сечение фотоионизации $\sigma \propto \text{Im } \alpha(\omega)$ определяется как сумма двух плазмонов:

$$\sigma(\omega) = \sigma^{\pi}(\omega) + \sigma^{\sigma+\pi}(\omega),$$

где вклад каждого плазмона определяется, в свою очередь, симметричной и антисимметричной модами:

$$\sigma^i(\omega) = \frac{4\pi\omega^2}{c} \frac{N_s^i \Gamma_s^i}{(\omega^2 - (\omega_s^i)^2)^2 + \omega^2 (\Gamma_s^i)^2} + \frac{4\pi\omega^2}{c} \frac{N_a^i \Gamma_a^i}{(\omega^2 - (\omega_a^i)^2)^2 + \omega^2 (\Gamma_a^i)^2}, \quad (9)$$

где индекс i обозначает π - или $(\sigma + \pi)$ -плазмон.

В представленном выше выражении ω обозначает энергию фотона, ω_s^i , ω_a^i — соответственно резонансные частоты симметричной и антисимметричной мод двух плазмонов; Γ_s^i , Γ_a^i — соответствующие ширины плазмонных резонансов; параметры N_s^i и N_a^i задают число электронов, которые вовлечены в каждое коллективное возбуждение.

Эти величины должны удовлетворять равенству

$$N_s^{\sigma+\pi} + N_a^{\sigma+\pi} + N_s^{\pi} + N_a^{\pi} = N,$$

где N — полное число делокализованных электронов в системе.

Считается, что в процесс формирования облака делокализованных электронов в фуллеренах и ароматических углеводородах вносят вклад по четыре валентных $2s^2 2p^2$ -электрона от каждого атома углерода. Таким образом, для описания исследуемых фуллеренов в данной работе используются следующие значения параметра N : 80 для C_{20} , 240 для C_{60} , 320 для C_{80} . В случае бензола и коронена число делокализованных электронов N составляет, соответственно, 27 и 99, что вызвано небольшим перераспределением заряда внутри систем. Анализ проведенных квантовохимических расчетов показывает, что в молекуле бензола парциальный заряд каждого атома водорода равен приблизительно $+0,5e$, в то время как каждый атом углерода получает дополнительный отрицательный заряд $-0,5e$. В коронене парциальный заряд каждого атома водорода составляет $+0,23e$. Таким образом, суммарный дополнительный отрицательный заряд, который в обоих соединениях переносится с атомов водорода на

атомы углерода, равен примерно $-3e$; это аналогично участию трех дополнительных электронов в формировании облака делокализованных электронов.

Частоты коллективных возбуждений ω_s^i и ω_a^i определяются как [28–30]:

$$\omega_{s/a}^{\sigma+\pi} = \omega_0 + \left[\frac{N_{s/a}^{\sigma+\pi}}{2(R_2^3 - R_1^3)} (3 \mp \sqrt{1 + 8\xi^3}) \right]^{1/2};$$

$$\omega_{s/a}^{\pi} = \left[\frac{N_{s/a}^{\pi}}{2(R_2^3 - R_1^3)} (3 \mp \sqrt{1 + 8\xi^3}) \right]^{1/2}, \quad (10)$$

где знаки плюс и минус соответствуют симметричной и антисимметричной моде, а $\xi = R_1 / R_2$ — отношение внутреннего к внешнему радиусу заряженного слоя.

Слагаемое ω_0 определяет энергию, начиная с которой все $(\sigma + \pi)$ -электроны могут считаться делокализованными и участвовать в коллективных возбуждениях [29]. При энергиях возбуждения ниже ω_0 некоторые валентные электроны по-прежнему являются связанными и, следовательно, не принимают участия в формировании плазмонных возбуждений. Как и в статье [29], в данной работе использовалось значение $\omega_0 = 14$ эВ при расчете спектров ионизации фуллеренов; для бензола и коронена использовались значения $\omega_0 = 6$ и 9 эВ, соответственно.

Метод расчета сечений ионизации

Расчет спектров фотоионизации углеродных наносистем при помощи методов из первых принципов проводился по следующей схеме. Геометрия основного состояния исследуемых соединений оптимизировалась с использованием вычислительного пакета Gaussian 09. Процедура оптимизации проводилась в приближении локальной плотности (LDA) с использованием валентно-расщепленного трехэкспоненциального базисного набора 6-311+G(d) с дополнительным набором поляризационных и диффузионных функций. Для учета обменных и корреляционных поправок использовался обменный функционал Слэтера [24], а также так называемый локальный функционал Пердю [32]. Затем проводился повторный самосогласованный расчет основного состояния систем, выполненный при помощи вычислительного пакета QuantumEspresso [33], основанного на методе псевдопотенциала в базисе плоских волн. Для проведения самосогласованного расчета всех исследуемых систем была выбрана квадратная ячейка размером $20 \times 20 \times 20$ Å, а также использовался параметр E_{cut} — энергия обрезки плоских волн, используемых в разложении электронной волновой функции, равный 30 ридбергам. Таким образом, в

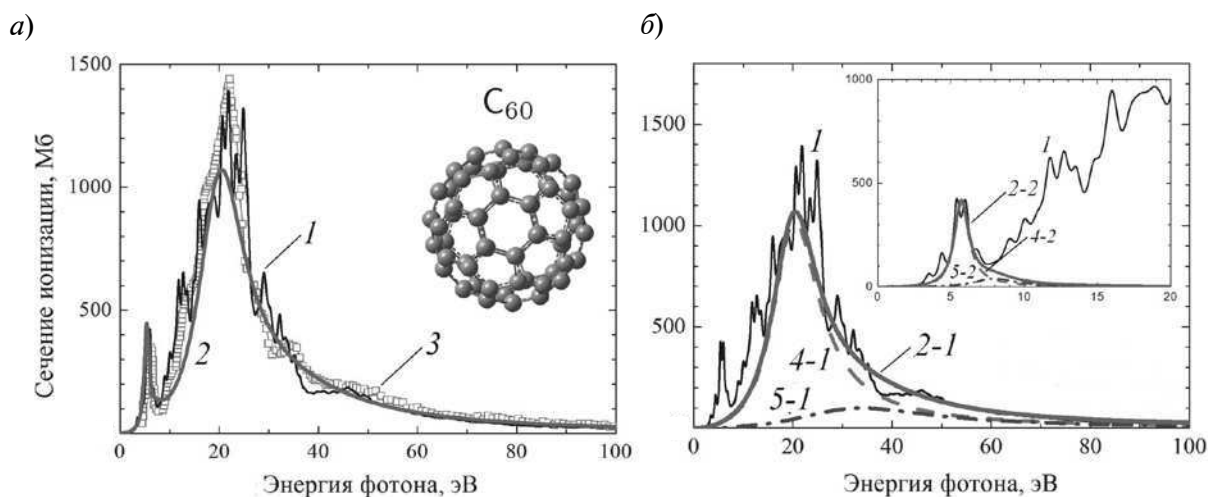


Рис. 2. Анализ рассчитанных (1, 2) спектров фотоионизации фуллерена C_{60} в сравнении с экспериментальным (3) из работы [9]: а — сечение фотоионизации, вычисленное в рамках квантовохимического (1) и классического (2) подходов в сравнении с экспериментом; б — вклады симметричной (4-1, 4-2) и антисимметричной (5-1, 5-2) мод в $(\sigma+\pi)$ - (2-1) и π - (2-2) плазмоны (на вставке — данные для π -плазмона)

разложении учитывались все плоские волны с энергией, меньшей или равной E_{cut} . Спектры фотоионизации были получены при помощи модуля TDDFT [34], входящего в вычислительный пакет Quantum-Espresso [33].

Результаты расчетов и их обсуждение

В данном разделе представлены результаты расчета спектров фотоионизации исследуемых фуллеренов и ароматических углеводородов. На рис. 2 представлены спектры фотоионизации фуллерена C_{60} , вычисленные в рамках квантовохимического (*ab initio*) и классического подходов (кривые 1 и 2 на рис. 2, а, соответственно) в области энергий возбуждения до 100 эВ. Основная резонансная структура, представленная на рис. 2, а образуется за счет коллективных осцилляций σ - и π -электронов системы, в то время как пик в низкоэнергетической области спектра связан с коллективным возбуждением только π -электронов.

Как видно из рис. 2, а, плазмонное резонансное приближение достоверно описывает основные особенности спектра, такие как ширина и положение плазмонных резонансных пиков. Метод TDDFT позволяет выявить более детальную структуру спектра, которая проявляется в виде ряда индивидуальных пиков, образованных поверх плазмонных резонансов. Анализ спектра, вычисленного при помощи плазмонного резонансного приближения, показывает, что около 195 из 240 валентных электронов молекулы C_{60} принимают участие в формировании возбуждений с энергией до 100 эВ. При этом около девяти π -электронов вовлечены в низкоэнергетическое коллективное возбуждение ниже 10 эВ (см. вставку на рис. 2, б). На рис. 2, а теоретические кривые сравниваются с результатами экспериментальных измерений фотоионизации молекулы C_{60} [9] (кривая 3 на рис. 2, а).

Рис. 2, б показывает отдельный вклад $(\sigma + \pi)$ - и π -плазмонов. Кривые 4-1, 5-1 и 4-2, 5-2 показывают, соответственно, вклады симметричной и антисимметричной мод в $(\sigma + \pi)$ - и π -плазмоны. Из рисунка видно, что основной вклад в плазмонные возбуждения, возникающие в процессе фотоио-

Параметры плазмонов (эВ), используемые при расчете спектра фотоионизации фуллерена C_{60}

Плазмон	ω_s	Γ_s	ω_a	Γ_a
$(\sigma + \pi)$ -	20,3	11,4	33,5	33,2
π -	5,8	1,2	7,9	3,5

Обозначения: ω_s , ω_a – резонансные частоты симметричной и антисимметричной мод плазмонов; Γ_s , Γ_a – соответствующие ширины плазмонных резонансов.

низации, вносит симметричная мода (4-1, 4-2) поверхностного плазмона, в то время как антисимметричная мода (5-1, 5-2) дает лишь небольшой вклад в резонансные пики. Резонансные частоты ω_s и ω_a двух мод $(\sigma + \pi)$ - и π -плазмонов, а также соответствующие ширины плазмонных резонансов, Γ_s и Γ_a представлены в таблице. Ширина симметричной моды $(\sigma + \pi)$ -плазмона, равная $\Gamma_s^{\sigma+\pi} = 11,4$ эВ, соответствует экспериментальным значениям, полученным из экспериментов по фотоионизации и неупругому рассеянию электронов на нейтральной молекуле C_{60} [5, 11]. Для антисимметричной моды в данной работе используется значение $\Gamma_a^{\sigma+\pi} = 33,2$ эВ, которое соответствует значениям ширины второго плазмонного резонанса, полученным в работе по фотоионизации ионов C_{60}^{q+} ($q = 1 - 3$) [8].

Спектры фотоионизации фуллеренов C_{20} и C_{80} представлены на рис. 3. Аналогично спектру молекулы C_{60} основной вклад в спектры ионизации других фуллеренов вносят возбуждения, в которые вовлечены оба типа делокализованных электронов, что выражается заметным широким пиком при энергии возбуждения около 20 эВ. При этом основной вклад в доминирующий пик вносит симметричная мода поверхностного плазмона. Анализ расчетов показывает, что два узких пика шириной ~1,5 эВ, расположенных в спектре молекулы C_{20} при энергиях возбуждения около 5 и 10 эВ, создаются за счет колебания двух и пяти π -электронов, соответственно, а в узкий низкоэнергетический пик в спектре молекулы C_{80} вносят вклад около двенадцати π -электронов.

Спектры фотоионизации ароматиче-

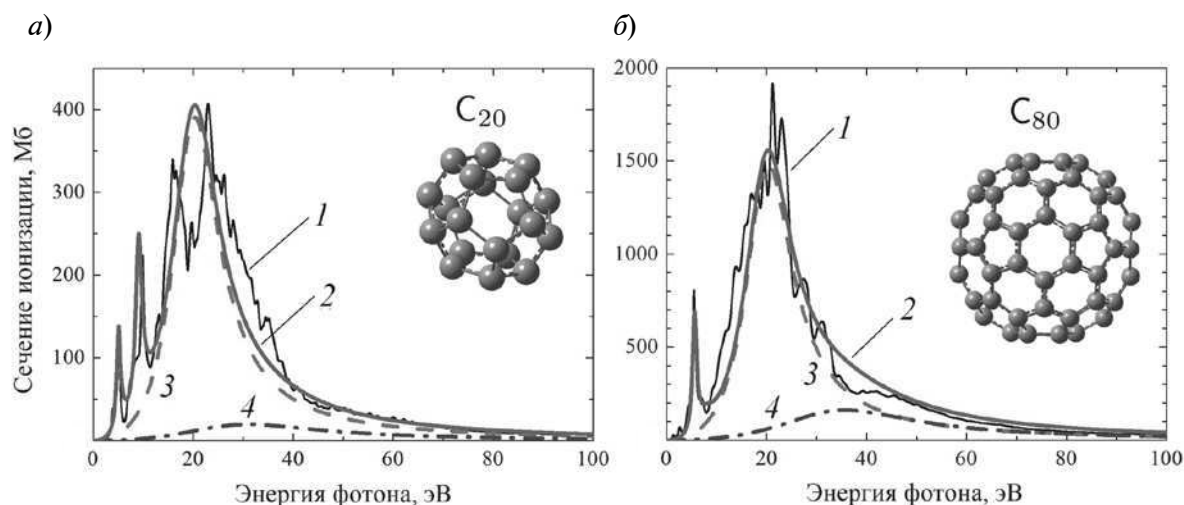


Рис. 3. Рассчитанные спектры фотоионизации фуллеренов C_{20} (а) и C_{80} (б), полученные в рамках квантовохимического (1) и классического (2) подходов; 3, 4 – вклады симметричной и антисимметричной мод в коллективное возбуждение, создаваемое $(\sigma + \pi)$ -электронами системы

ских углеводородов аналогичны спектрам фуллеренов. На рис. 4, а приведен спектр простейшего ароматического соединения – бензола. Спектр более сложного соединения – коронена, представляющего собой полициклический ароматический углеводород, состоящий из шести бензольных колец, представлен на рис. 4, б.

Как и в случае фуллеренов, спектры углеводородов характеризуются несколькими резонансными пиками. Наиболее

заметный пик, расположенный при энергиях возбуждения около 15 – 20 эВ, соответствует коллективному возбуждению $(\sigma + \pi)$ -электронов, в то время как возбуждения π -электронов характеризуются одним (в случае бензола) или двумя (в случае коронена) очень узкими (шириной порядка 0,7 эВ) пиками в области 5 – 10 эВ. Анализ спектра ионизации бензола, вычисленного в плазмонном резонансном приближении, показывает, что все 27 делокализованных

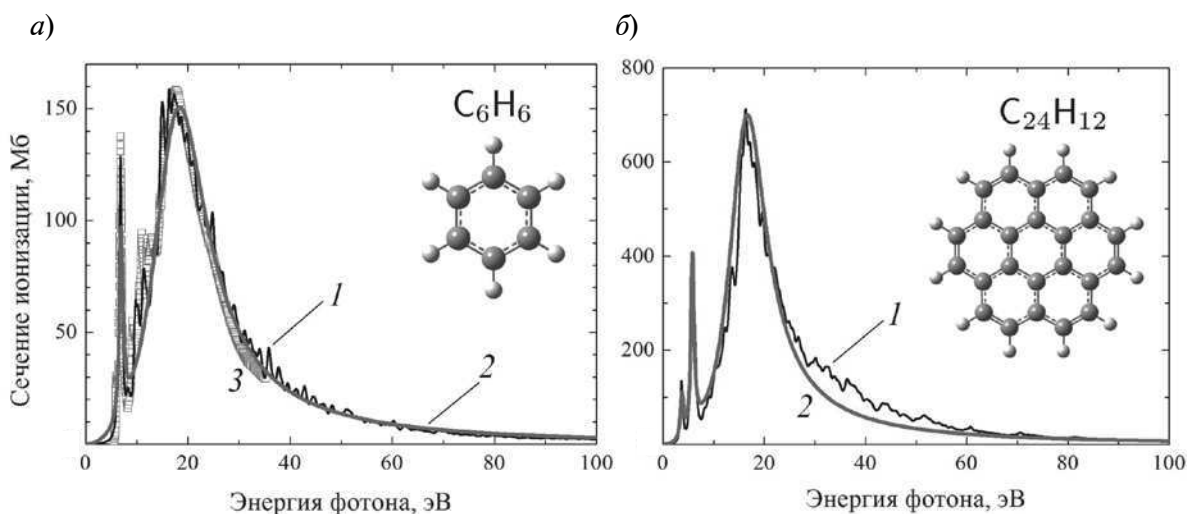


Рис. 4. Рассчитанные спектры фотоионизации (1, 2) бензола (а) и коронена (б), полученные в рамках квантовохимического (1) и классического (2) подходов; 3 – экспериментальный спектр бензола из работы [35]

электронов системы принимают участие в формировании возбуждений с энергией до 100 эВ, при этом всего один π -электрон участвует в низкоэнергетическом возбуждении с энергией порядка 6 эВ. В случае корона возбуждения до 100 эВ вызваны участием 94 из 99 делокализованных электронов, а в низкоэнергетические пики, расположенные при энергиях 3,5 эВ и 6,0 эВ, вносят вклад один и четыре π -электрона, соответственно.

Итак, в данной работе проведено исследование электронных возбуждений, возникающих в процессе фотоионизации углеродных наносистем, таких как фуллерены C_n и ароматические углеводороды C_nH_m . Расчет спектров фотоионизации исследуемых соединений проведен в рамках методов из первых принципов, а также в рамках модельного подхода, основанного на плазмонном резонансном приближении. Показано, что основной вклад в спектры фотоионизации углеродных со-

единений вносят плазмоны — коллективные электронные возбуждения, которые проявляются в спектрах в виде заметных резонансных пиков.

Представленные спектры определяют в первую очередь широкой резонансной структурой, расположенной при энергиях возбуждения 15–25 эВ. Данный резонанс в спектрах ионизации образуется за счет коллективных осцилляций σ - и π -делокализованных электронов углеродных систем. Спектры также характеризуются наличием одного или нескольких гораздо более узких (от 5 до 10 эВ) пиков в низкоэнергетической области спектра, которые связаны с коллективным возбуждением только π -электронов.

В работе показано, что спектры, полученные в рамках модельного подхода, находятся в хорошем согласии с результатами более точных квантовохимических вычислений, а также согласуется с имеющимися экспериментальными данными по фотоионизации углеродных систем.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Sattler, K.D.** Handbook of nanophysics: clusters and fullerenes [Text] / K.D. Sattler.— Boca Raton: CRC Press, 2010.— 909 p.
2. **Sattler, K.D.** Handbook of nanophysics: nanotubes and nanowires [Text] / K.D. Sattler.— Boca Raton: CRC Press, 2010.— 784 p.
3. **Solov'yov, A.V.** Plasmon excitations in metal clusters and fullerenes [Text] / A.V. Solov'yov // Int. J. Mod. Phys. B.— 2005.— Vol. 19.— P. 4143–4184.
4. **Bertsch, G.F.** Collective plasmon excitations in C_{60} clusters [Text] / G.F. Bertsch, A. Bulgac, D. Tomanek [et al.] // Phys. Rev. Lett.— 1991.— Vol. 67.— P. 2690–2693.
5. **Hertel, I.V.** Giant plasmon excitations in free C_{60} and C_{70} molecules studied by photoionization [Text] / I.V. Hertel, H. Steger, J. de Vries [et al.] // Phys. Rev. Lett.— 1992.— Vol. 68.— P. 784–787.
6. **Berkowitz, J.** Sum rules and the photoabsorption cross section of C_{60} [Text] / J. Berkowitz // J. Chem. Phys.— 1999.— Vol. 111.— P. 1446–1453.
7. **Reinköster, A.** The photoionization and fragmentation of C_{60} in the energy range 26–130 eV [Text] / A. Reinköster, S. Korica, G. Prumper [et al.] // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.— 2004.— Vol. 37.— P. 2135–2144.
8. **Scully, S.W.J.** Photoexcitation of a volume plasmon in C_{60} ions [Text] / S.W.J. Scully, E.D. Emmons, M.F. Gharaibeh [et al.] // Phys. Rev. Lett.— 2005.— Vol. 94.— P. 065503-(1–4).
9. **Kafle, B.P.** Absolute total photoionization cross section of C_{60} in the range of 25–120 eV: revisited [Text] / B.P. Kafle, H. Katayanagi, M. Prodhan [et al.] // J. Phys. Soc. Jpn.— 2008.— Vol. 77.— P. 014302-(1–5).
10. **Keller, J.W.** Electron energy loss spectroscopy of C_{60} [Text] / J.W. Keller, M.A. Coplan // Chem. Phys. Lett.— 1992.— Vol. 193.— P. 89–92.
11. **Gerchikov, L.G.** Diffraction of fast electrons on the fullerene C_{60} molecule [Text] / L.G. Gerchikov, P.V. Efimov, V.M. Mikoushkin [et al.] // Phys. Rev. Lett.— 1998.— Vol. 81.— P. 2707–2710.
12. **Verkhovtsev, A.V.** Interplay of the volume and surface plasmons in the electron energy loss spectra of C_{60} [Text] / A.V. Verkhovtsev, A.V. Korol, A.V. Solov'yov [et al.] // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.— 2012.— Vol. 45.— P. 141002-(1–6).
13. **Runge, E.** Density-functional theory for time-dependent systems [Text] / E. Runge, E.K.U. Gross // Phys. Rev. Lett.— 1984.— Vol. 52.— P. 997–1000.
14. **Lundqvist, S.** Theory of the inhomogeneous electron gas [Text] / S. Lundqvist, N.H. March.— New York: Plenum Press, 1983.— 416 p.
15. **Connerade, J.-P.** Formalism for multiphoton plasmon excitation in jellium clusters [Text] /



- J.-P. Connerade, A.V. Solov'yov // *Phys. Rev. A*. — 2002. — Vol. 66. — P. 013207-(1–16)
16. **Verkhovtsev, A.V.** Formalism of collective electron excitations in fullerenes [Text] / A.V. Verkhovtsev, A.V. Korol, A.V. Solov'yov // *Eur. Phys. J. D*. — 2012. — Vol. 66. — P. 253-(1–11).
17. **Martins J.L.** Analysis of occupied and empty electronic states in C_{60} [Text] / J.L. Martins, N. Troullier, J.H. Weaver // *Chem. Phys. Lett.* — 1991. — Vol. 180. — P. 457–460.
18. **Haddon R.C.** Electronic structure and bonding in icosahedral C_{60} [Text] / R.C. Haddon, L.E. Brus, K. Raghavachari // *Chem. Phys. Lett.* — 1986. — Vol. 125. — P. 459–464.
19. **Gerchikov, L.G.** Scattering of electrons on metal clusters and fullerenes [Text] / L.G. Gerchikov, A.V. Solov'yov, J.-P. Connerade [et al.] // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* — 1997. — Vol. 30. — P. 4133–4161.
20. **Gerchikov, L.G.** Many-body treatment of electron inelastic scattering on metal clusters [Text] / L.G. Gerchikov, A.N. Ipatov, A.V. Solov'yov // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* — 1997. — Vol. 30. — P. 5939–5959.
21. **Gerchikov, L.G.** Excitation of multipole plasmon resonances in clusters by fast electron impact [Text] / L.G. Gerchikov, A.N. Ipatov, A.V. Solov'yov [et al.] // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* — 1998. — Vol. 31. — P. 3065–3077.
22. **Bolognesi, P.** Collective excitations in the electron energy loss spectra of C_{60} [Text] / P. Bolognesi, A. Ruocco, L. Avaldi [et al.] // *Eur. Phys. J. D*. — 2012. — Vol. 66. — P. 254-(1–9).
23. **Korol, A.V.** Comment on «Photoexcitation of a volume plasmon in C_{60} ions» [Text] / A.V. Korol, A.V. Solov'yov // *Phys. Rev. Lett.* — 2007. — Vol. 98. — P. 179601.
24. **Kohn, W.** Self-consistent equations including exchange and correlation effects [Text] / W. Kohn, L.J. Sham // *Phys. Rev.* — 1965. — Vol. 140. — P. A1133–A1138.
25. **Walker, B.** Efficient approach to time-dependent density-functional perturbation theory for optical spectroscopy [Text] / B. Walker, A.M. Saitta, R. Gebauer [et al.] // *Phys. Rev. Lett.* — 2006. — Vol. 96. — P. 113001-(1–4).
26. **Rocca, D.** Turbo charging time-dependent density-functional theory with Lanczos chains [Text] / D. Rocca, R. Gebauer, Y. Saad [et al.] // *J. Chem. Phys.* — 2008. — Vol. 128. — P. 154105-(1–14)
27. **Walker, B.** Ultrasoft pseudopotentials in time-dependent density-functional theory [Text] / B. Walker, R. Gebauer // *J. Chem. Phys.* — 2007. — Vol. 127. — P. 164106-(1–9).
28. **Lambin, Ph.** Polarization waves and van der Waals cohesion of C_{60} fullerite [Text] / Ph. Lambin, A.A. Lucas, J.-P. Vigneron // *Phys. Rev. B*. — 1992. — Vol. 46. — P. 1794–1803.
29. **Östling, D.** Theory for collective resonances of the C_{60} molecule [Text] / D. Östling, P. Apell, A. Rosen // *Europhys. Lett.* — 1993. — Vol. 21. — P. 539–544.
30. **Lo, S.** Dynamical screening of an atom confined within a finite-width fullerene [Text] / S. Lo, A.V. Korol, A.V. Solov'yov // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* — 2007. — Vol. 40. — P. 3973–3981.
31. **Gerchikov, L.G.** Surface- and volume-plasmon excitations in electron inelastic scattering on metal clusters [Text] / L.G. Gerchikov, A.N. Ipatov, R.G. Polozkov [et al.] // *Phys. Rev. A*. — 2000. — Vol. 62. — P. 043201-(1–8).
32. **Perdew, J.P.** Self-interaction correction to density-functional approximations for many-electron systems [Text] / J.P. Perdew, A. Zunger // *Phys. Rev. B*. — 1981. — Vol. 23. — P. 5048–5079.
33. **Malcioglu, O.B.** TurboTDDFT – A code for the simulation of molecular spectra using the Liouville-Lanczos approach to time-dependent density-functional perturbation theory [Text] / O.B. Malcioglu, R. Gebauer, D. Rocca [et al.] // *Comp. Phys. Commun.* — 2011. — Vol. 182. — P. 1744–1754.
34. **Giannozzi, P.** Quantum espresso: a modular and open-source software project quantum simulations of materials [Text] / P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini [et al.] // *J. Phys.: Cond. Mat.* — 2009. — Vol. 21. — P. 395502-(1–19).
35. **Koch, E.E.** Optical absorption of benzene vapour for photon energies from 6 eV to 35 eV [Text] / E.E. Koch, A. Otto // *Chem. Phys. Lett.* — 1972. — Vol. 12. — P. 476–480.

REFERENCES

1. **Sattler K.D.** Handbook of nanophysics: clusters and fullerenes. Boca Raton: CRC Press, 2010, 909 p.
2. **Sattler K.D.** Handbook of nanophysics: nanotubes and nanowires. Boca Raton: CRC Press, 2010, 784 p.
3. **Solov'yov A.V.** Plasmon excitations in metal clusters and fullerenes. *Int. J. Mod. Phys. B*, 2005, Vol. 19, pp. 4143–4184.
4. **Bertsch G.F., Bulgac A., Tomanek D. et al.** Collective plasmon excitations in C_{60} clusters. *Phys. Rev. Lett*, 1991, Vol. 67, pp. 2690–2693.
5. **Hertel I.V., Steger H., de Vries J. et al.** Giant plasmon excitations in free C_{60} and C_{70} molecules studied by photoionization. *Phys. Rev. Lett*, 1992, Vol. 68, pp. 784–787.
6. **Berkowitz J.** Sum rules and the photoabsorption cross section of C_{60} . *J. Chem. Phys*, 1999, Vol. 111,

pp. 1446–1453.

7. Reinköster A., Korica S., Prumper G. et al. The photoionization and fragmentation of C_{60} in the energy range 26–130 eV. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2004, Vol. 37, pp. 2135–2144.

8. Scully S.W.J., Emmons E.D., Gharaibeh M.F. et al. Photoexcitation of a volume plasmon in C_{60} ions. *Phys. Rev. Lett.*, 2005, Vol. 94, pp. 065503-(1–4).

9. Kafle B.P., Katayanagi H., Prodhan M. et al. Absolute total photoionization cross section of C_{60} in the range of 25–120 eV: revisited. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 2008, Vol. 77, pp. 014302-(1–5)

10. Keller J.W., Coplan M.A. Electron energy loss spectroscopy of C_{60} . *Chem. Phys. Lett.*, 1992, Vol. 193, pp. 89–92.

11. Gerchikov L.G., Efimov P.V., Mikoushkin V.M. et al. Diffraction of fast electrons on the fullerene C_{60} molecule. *Phys. Rev. Lett.*, 1998, Vol. 81, pp. 2707–2710.

12. Verkhovtsev A.V., Korol A.V., Solov'yov A.V. et al. Interplay of the volume and surface plasmons in the electron energy loss spectra of C_{60} . *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2012, Vol. 45, pp. 141002-(1–6).

13. Runge E., Gross E.K.U. Density-functional theory for time-dependent systems. *Phys. Rev. Lett.*, 1984, Vol. 52, pp. 997–1000.

14. Lundqvist S., March N.H. Theory of the inhomogeneous electron gas, New York: Plenum Press, 1983, 416 p.

15. Connerade J.-P., Solov'yov A.V. Formalism for multiphoton plasmon excitation in jellium clusters. *Phys. Rev. A*, 2002, Vol. 66, p. 013207(1–16)

16. Verkhovtsev A.V., Korol A.V., Solov'yov A.V. Formalism of collective electron excitations in fullerenes. *Eur. Phys. J. D*, 2012, Vol. 66, p. 253-(1–11).

17. Martins J.L., Troullier N., Weaver J.H. Analysis of occupied and empty electronic states in C_{60} . *Chem. Phys. Lett.*, 1991, Vol. 180, pp. 457–460.

18. Haddon R.C., Brus L.E., Raghavachari K. Electronic structure and bonding in icosahedral C_{60} . *Chem. Phys. Lett.*, 1986, Vol. 125, pp. 459–464.

19. Gerchikov L.G., Solov'yov A.V., Connerade J.-P. et al. Scattering of electrons on metal clusters and fullerenes. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1997, Vol. 30, pp. 4133–4161.

20. Gerchikov L.G., Ipatov A.N., Solov'yov A.V. Many-body treatment of electron inelastic scattering on metal clusters. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1997, Vol. 30, pp. 5939–5959.

21. Gerchikov L.G., Ipatov A.N., Solov'yov A.V. et al. Excitation of multipole plasmon resonances in clusters by fast electron impact. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1998, Vol. 31, pp. 3065–3077.

22. Bolognesi P., Ruocco A., Avaldi L. et al. Collective excitations in the electron energy loss spectra of C_{60} . *Eur. Phys. J. D*, 2012, Vol. 66, p. 254-(1–9).

23. Korol A.V., Solov'yov A.V. Comment on «Photoexcitation of a volume plasmon in C_{60} ions». *Phys. Rev. Lett.*, 2007, Vol. 98, p. 179601.

24. Kohn W., Sham L.J. Self-consistent equations including exchange and correlation effects. *Phys. Rev.*, 1965, Vol. 140, pp. A1133–A1138.

25. Walker B., Saitta A.M., Gebauer R. et al. Efficient approach to time-dependent density-functional perturbation theory for optical spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 2006, Vol. 96, pp. 113001-(1–4).

26. Rocca D., Gebauer R., Saad Y. et al. Turbo charging time-dependent density-functional theory with Lanczos chains. *J. Chem. Phys.*, 2008, Vol. 128, p. 154105-(1–14)

27. Walker B., Gebauer R. Ultrasoft pseudopotentials in time-dependent density-functional theory. *J. Chem. Phys.*, 2007, Vol. 127, p. 164106-(1–9).

28. Lambin Ph., Lucas A.A., Vigneron J.-P. Polarization waves and van der Waals cohesion of C_{60} fullerite. *Phys. Rev. B*, 1992, Vol. 46, pp. 1794–1803.

29. Östling D., Apell P., Rosen A. Theory for collective resonances of the C_{60} molecule. *Europhys. Lett.*, 1993, Vol. 21, pp. 539–544.

30. Lo S., Korol A.V., Solov'yov A.V. Dynamical screening of an atom confined within a finite-width fullerene. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 2007, Vol. 40, pp. 3973–3981.

31. Gerchikov L.G., Ipatov A.N., Polozkov R.G. et al. Surface- and volume-plasmon excitations in electron inelastic scattering on metal clusters. *Phys. Rev. A*, 2000, Vol. 62, pp. 043201-(1–8).

32. Perdew J.P., Zunger A. Self-interaction correction to density-functional approximations for many-electron systems. *Phys. Rev. B*, 1981, Vol. 23, pp. 5048–5079.

33. Malcioglu O.B., Gebauer R., Rocca D. et al. turboTDDFT – A code for the simulation of molecular spectra using the Liouville-Lanczos approach to time-dependent density-functional perturbation theory. *Comp. Phys. Commun.*, 2011, Vol. 182, pp. 1744–1754.

34. Giannozzi P., Baroni S., Bonini N. et al. QUANTUM ESPRESSO: a modular and open-source software project quantum simulations of materials. *J. Phys.: Cond. Mat.*, 2009, Vol. 21, p. 395502-(1–19).

35. Koch E.E., Otto A. Optical absorption of benzene vapour for photon energies from 6 eV to 35 eV. *Chem. Phys. Lett.*, 1972, Vol. 12, pp. 476–480.

ВЕРХОВЦЕВ Алексей Валерьевич — аспирант кафедры экспериментальной физики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

verkhovtsev@physics.spbstu.ru

КОРОЛЬ Андрей Владимирович — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физики Санкт-Петербургского государственного морского технического университета.

198262, г. Санкт-Петербург, Ленинский пр., 101.

verkhovtsev@physics.spbstu.ru

СОЛОВЬЁВ Андрей Владимирович — доктор физико-математических наук, профессор кафедры экспериментальной физики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета, ведущий научный сотрудник Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

verkhovtsev@physics.spbstu.ru

УДК 539.19

А.С. Скублов, В.Б. Совков, В.С. Иванов

НАБЛЮДЕНИЕ И АНАЛИЗ ТРИПЛЕТНЫХ СОСТОЯНИЙ ТЯЖЕЛЫХ ДИМЕРОВ ЩЕЛОЧНЫХ МЕТАЛЛОВ

A.S. Skublov, V.B. Sovkov, V.S. Ivanov

St. Petersburg State University,
1 Ulyanovskaya St., St. Petersburg, 198504, Russia.

TRIPLET STATES OF HEAVY ALKALI METAL DIMERS: OBSERVATION AND ANALYSIS

В работе суммированы результаты последних исследований триплетных состояний тяжелых димеров щелочных металлов (Rb_2 , Cs_2). Исследования направлены на анализ экспериментальных данных по спектроскопии двойного оптически-оптического резонанса, облегченного взаимодействием состояний. Описана и продемонстрирована методика обработки таких данных.

ДИМЕРЫ ЩЕЛОЧНЫХ МЕТАЛЛОВ, АДИАБАТИЧЕСКИЕ ПОТЕНЦИАЛЫ, АНАЛИЗ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ.

The latest results on the study of the triplet states of the heavy alkali metal dimers have been summed up. The investigations were aimed at an analysis of the experimental data on the perturbation facilitated optical-optical double resonance (PFOODR) spectroscopy. The technique of such data treatment was described and demonstrated.

ALKALI METAL DIMERS, ADIABATIC POTENTIALS, EXPERIMENTAL DATA ANALYSIS.

Прецизионное измерение величин колебательно-вращательных термов и интенсивностей оптических переходов в системе квантовых состояний молекул уже давно составляет традиционное применение лазеров в физико-химических исследованиях [1]. Техника двойного оптически-оптического резонанса, облегченного взаимодействием состояний (Perturbation Facilitated Optical-Optical Double Resonance – PFOODR) [2, 3], позволяет достичь триплетных состояний молекул, основное состояние которых является синглетным, хотя последнее обстоятельство препятствует прямому оптическому заселению этих состояний.

Энергетическая схема, поясняющая суть названной экспериментальной техники, приведена на рис. 1 (выбран пример димера цезия). Термодинамически равновесные пары щелочного металла при типичной

температуре $T \approx 500\text{--}700$ К подвергаются одновременному облучению двумя лазерами, действующими с противоположных сторон: первый предназначен для накачки (частота ν_1), второй – пробный (ν_2).

Энергия накачки $h\nu_1$ переводит молекулу из основного синглетного состояния $X^1\Sigma_g^+$ в систему $A^1\Sigma_u^+ \sim b^3\Pi_u$, представляющую собой квантовую комбинацию синглетного и триплетного электронных состояний, перемешанных вследствие сильного спин-орбитального взаимодействия. Выбираются такие уровни энергии этой системы (оконные), в которых высоки доли как синглетной, так и триплетной компонент. Энергия излучения пробного лазера с рабочей частотой ν_2 переводит молекулу из комбинационного в вышележащее триплетное состояние (на рис. 1 это $Cs_2\ 3^3\Sigma_g^+$); ввиду наличия триплетной компоненты в оконном состоянии переход идет с высокой эф-

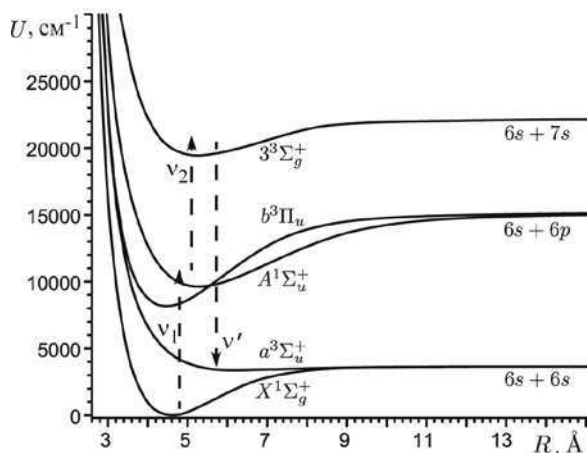


Рис. 1. Типичная энергетическая схема PFOODR-эксперимента на примере молекулы Cs_2 . Сплошные линии — адиабатические потенциалы $U(R)$ межъядерного взаимодействия в соответствующих состояниях; пунктирами показаны оптические переходы с соответствующими частотами

фективностью. Данная энергетическая схема переходов позволяет селективно заселить отдельный колебательно-вращательный уровень верхнего состояния; часто удается также разрешить (полностью или частично) его сверхтонкую структуру. Появление флуоресценции с частотой ν' вызвано переходом в расположенные ниже триплетные состояния (чаще всего это $a^3\Sigma_u^+$) и свидетельствует о достижении оптического резонанса с таким уровнем; последующее сканирование по частоте пробного лазера ν_2 позволяет последовательно заселить группу уровней в доступном энергетическом диапазоне и измерить энергии их термов. Регистрация разрешенной по частоте флуоресценции дает большой дополнительный объем данных об интенсивностях переходов и, в частности, существенно упрощает решение задачи о нумерации уровней верхнего состояния колебательным квантовым числом.

Типичный спектр разрешенной флуоресценции вместе с его квантовомеханической симуляцией (выполнена нами), показан на рис. 2. Заметим, что адиабатический потенциал в состоянии $a^3\Sigma_u^+$, проявляющий в большей части энергетического диапазона отталкивательное действие, обладает

неглубокой потенциальной ямой. Это обуславливает наличие в спектре флуоресценции не только сплошных, но и дискретных областей.

Эксперименты рассматриваемого типа несут в себе богатую информацию об электронной структуре, а также ядерной и электронной (включая спиновую) динамике. Изначально объектом значительной части экспериментов в этой технике являлись легкие димеры щелочных металлов (Li_2 , Na_2 , K_2) [2, 3], для чего применялись лазеры видимого и ближнего ультрафиолетового диапазонов. В последние несколько лет основной интерес был перенесен на тяжелые димеры (Rb_2 , Cs_2), что потребовало применения инфракрасных лазеров. Интерес к этим соединениям не случаен: они являются одними из основных или даже

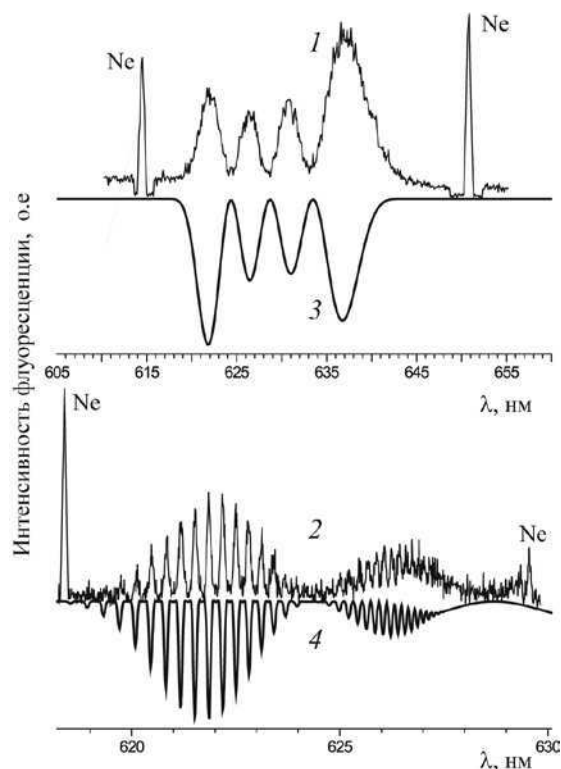


Рис. 2. Спектры флуоресценции Cs_2 в электронном переходе $3^3\Sigma_g^+ (\nu = 3, N = 33, T = 19573,262 \text{ см}^{-1}) \rightarrow a^3\Sigma_u^+$, зарегистрированные со сравнительно низким (1) и более высоким (2) разрешением, а также их квантовомеханическая симуляция (спектры перевернуты) (3, 4). Пики флуоресценции от Ne служат в эксперименте реперными калибровочными линиями

основными объектами в перспективных исследованиях по лазерной ультрахолодной ассоциации, бозе- и ферми-конденсации, по оптическому когерентному управлению квантовой динамикой (см., например, работу [4]). Димер цезия был предложен в качестве тестовой системы для проверки возможной вариации мировых констант (отношение масс электрона и протона, постоянная тонкой структуры) во времени [5, 6]. В связи с этими и другими приложениями, разумеется, оказалась востребованной точная количественная информация об их электронной структуре и параметрах межъядерного взаимодействия.

Весь комплекс исследований выполняется нами в рамках международного сотрудничества. Наше участие традиционно сводилось к планированию части экспериментов и анализу полученных данных.

Целью настоящей работы было суммирование последних результатов таких исследований и демонстрация методов анализа данных рассматриваемых экспериментов.

Типичные задачи, требующие решения при анализе экспериментов, сводятся к классификации зарегистрированных состояний, определению адиабатических потенциалов межъядерного взаимодействия в этих электронных состояниях, а также параметров тонких, сверхтонких и других неадиабатических (различной природы) взаимодействий; при условии аккуратной калибровки интенсивностей могут быть также определены функции дипольного момента конкретного перехода.

Перечисленные задачи относятся к классу обратных задач и чаще всего решаются методами оптимизационного моделирования. Следует обратить внимание на то, что, вследствие сложности эксперимента, редко удается получить исчерпывающую информацию по отдельно взятому состоянию (например, представительный набор колебательно-вращательных термов в полном энергетическом диапазоне). Поэтому в анализ приходится одновременно закладывать разнородные экспериментальные и априорные теоретические данные (энергии термов, распределения интенсивностей, расчетные *ab initio* потенциалы и т. п.), от-

носящиеся к целой группе электронных состояний: только согласие результатов моделирования всех этих данных может служить критерием адекватности построенной модели. При этом требуется применение прецизионных устойчивых алгоритмов и компьютерных программ для расчета наблюдаемых в эксперименте величин по параметрам молекулярного строения, подлежащим определению.

В своей практике мы используем набор утилит на алгоритмическом языке Matlab, написанный нами для создания, отладки и последующей оптимизации сложных моделей, которые строят из более простых «частных» моделей по блочному принципу (пакет Optimizer). В качестве базовых частных моделей используются наши программы решения стационарного уравнения Шредингера (метод Нумерова – Кули – Блатта, ренормированный метод Нумерова), расчета квантовой динамики (метод расщепленного оператора эволюции), в том числе и для многоканальных систем, т. е. для нескольких неадиабатически взаимодействующих электронных состояний (см. работы [1, 7] и ссылки в них). В частности, спектры, показанные на рис. 2, были рассчитаны в технике расщепленного оператора по предварительно определенным нами потенциалам состояний $3^3\Pi_g$ и $a^3\Sigma_u^+$.

Для аппроксимации самих потенциалов используется ряд подходов: поточечный потенциал типа РКР (Ридберг – Клейн – Рисс; см. работу [8]), деформированный *ab initio* потенциал [9], многопараметрические модельные функции [10]. В последнее время повысились требования к способности таких функций корректно описывать область дальнего действия, где доминирующую роль играют так называемые дисперсионные эффекты: эта область важна для описания явлений, в которых происходит медленное сближение (ультрахолодная ассоциация) или разлет атомов.

Из всего множества триплетных состояний димеров щелочных металлов наибольший интерес, на наш взгляд, представляет нижнее триплетное состояние $a^3\Sigma_u^+$. Как уже отмечалось, оно обладает неглубокой

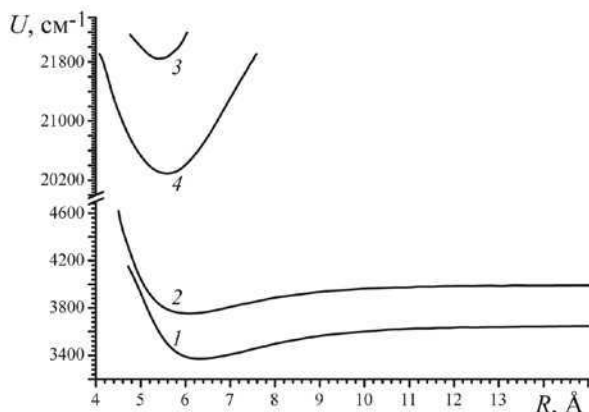


Рис. 3. Потенциалы триплетных состояний молекул Cs_2 (1, 3) и Rb_2 (2, 4), определенные по данным PFOODR-спектроскопии. Энергия отсчитывается от дна потенциальной ямы основного состояния $X^1\Sigma_g^+$ соответствующей молекулы. Основные параметры состояний приведены в таблице

потенциальной ямой, параметры которой могут быть оценены традиционными для спектроскопии методами по колебательно-вращательной структуре ее уровней. Привлечение данных по интенсивностям переходов из верхних состояний позволяет уточнить сведения об этой потенциальной яме, а также получить информацию об «отталкивательной» ветви потенциала. Потенциалы состояния $a^3\Sigma_u^+$ в форме многопараметрических модельных функций были получены нами в результате решения обратных задач рассмотренного типа для Cs_2 в работах [10 – 12] и Rb_2 [13]. Результаты, относящиеся к молекуле Rb_2 , были в дальнейшем уточнены (см. далее). Графики указанных функций вместе с потенциалами состояний, которые анализировались совместно с $a^3\Sigma_u^+$, показаны на рис. 3; в таблице приведены значения основных спектроскопических параметров этих состояний. Качество воспроизведения экспериментальных спектров с помощью этих функций в случае димера цезия иллюстрирует приведенный выше рис. 2; аналогичное сравнение для димера рубидия представлено на рис. 4.

Результаты исследований по состоянию $a^3\Sigma_u^+$ димера рубидия, опубликованные нами в работе [13], вызвали некоторую

дискуссию. В работе [14], вышедшей вслед за работой [13], был представлен эксперимент по измерению термов этого состояния с высокой точностью (~ 100 МГц) в изотопе $^{87}\text{Rb}_2$. Для его выполнения использовалась лазерная ультрахолодная ассоциация атомов в магнитооптической ловушке с последующей лазерной спектроскопией темных состояний. Полученные авторами данные относились к низким вращательным состояниям ($N = 0, 2, 4$). На основании их экстраполяции было сделано заключение о необходимости изменения на единицу во вращательном отнесении данных фурье-спектроскопии по энергиям термов изотопа $^{85}\text{Rb}_2$, пронумерованных нами в работе [13] как $N = 68, 70$. В связи с этим стоит прежде всего заметить, что четность вращательного квантового числа N в состояниях симметрии Σ^+ всегда совпадает с полной инверсионной четностью молекулярного состояния (как $(-1)^N$), а инверсионная четность однозначно определяется схемой оптических переходов; это означает, что коррекция нашего отнесения с изменением четности N невозможна. В дополнение к прежним в университете Темпл были проведены эксперименты, предварительный анализ которых подтвердил справедливость первоначального отнесения, предложенного в работе [13]. Потенциальная функция состояния Rb_2 $a^3\Sigma_u^+$, описывающая всю

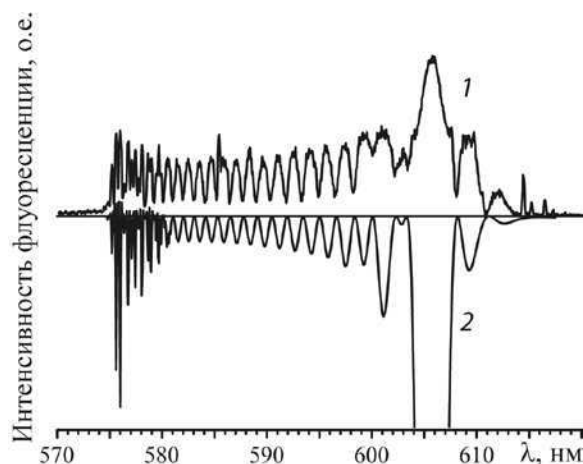


Рис. 4. Спектр флуоресценции Rb_2 в электронном переходе $2^3\Pi^+(v=27, J=49, T=21195,149 \text{ см}^{-1}) \rightarrow a^3\Sigma_u(I)$ и его квантовомеханическая симуляция (спектр перевернут) (2)

Основные параметры триплетных состояний димеров щелочных металлов, полученные по данным PFOODR-спектроскопии (рис. 3)

Номер кривой на рис. 3	Димер	Состояние	R_e , Å	T_e , см ⁻¹	ω_e , см ⁻¹
1	Cs ₂	$a^3\Sigma_u^+$	6,318	3371,349	11,297
2	Rb ₂	$a^3\Sigma_u^+$	6,070	3752,157	13,639
3	Cs ₂	$1_g(3^3\Pi_g)$	5,424	21840,900	39,220
4	Rb ₂	$2^3\Pi_g$	5,591	20287,902	33,258

Обозначения: R_e — равновесное межъядерное расстояние, T_e — энергия дна потенциальной ямы, ω_e — частота колебаний

доступную совокупность экспериментальных данных при их корректной классификации, будет опубликована нами в ближайшее время. Представленный вариант этой функции (см. рис. 3 и таблицу) является наиболее точным на момент написания настоящей работы.

В заключение еще раз отметим, что эксперименты в технике PFOODR-спектроскопии позволяют получать обширную и детальную информацию о строении молекул, в том числе данные по состояниям, которые недоступны при использовании более традиционных подходов. Анализ этих данных требует применения современных методов прикладной математики и аккуратного количественного моделирования квантовомеханической динамики. Приведенные в настоящей работе примеры не исчерпывают всего объема информации, доступной из PFOODR-экспериментов. В частности, неосвещенными остались во-

просы, связанные с наблюдением и анализом сверхтонкой структуры и неадиабатических возмущений различной природы (см., например, работу [15]). По нашему убеждению, получаемые по данным PFOODR-спектроскопии адиабатические потенциалы триплетных состояний, в том числе приведенные в настоящей работе, являются наиболее надежными из доступных в настоящее время.

Авторы настоящей работы выражают глубокую благодарность профессору L. Li, докторам F. Xie и X. Dai, а также другим сотрудникам исследовательской лаборатории университета Цинхуа (г. Пекин, Китай); профессору А.М. Лууга и другим сотрудникам Темпльского университета (г. Филадельфия, США); профессору S. Magnier университета Лилля (г. Лилль, Франция) за полноценное сотрудничество в проводимых нами исследованиях. В частности, основной объем экспериментальных измерений выполнен на базе университетов Цинхуа и Темпл.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Lefebvre-Brion, H. The spectra and dynamics of diatomic molecules [Text] / H. Lefebvre-Brion, R.W. Field. — Amsterdam—Boston —Heidelberg —New York—Oxford—Paris—San Diego—San Francisco—Singapore—Sydney—Tokio: Elsevier. Academic Press, 2004. — 766 p.
2. Li, L. Direct observation of high-lying $^3\Pi_g$ states of the Na₂ molecule by optical-optical double resonance [Text] / L. Li, R.W. Field // J. Phys. Chem. — 1983. — Vol. 87. — № 16. — P. 3020–3022.
3. Li, D. The K₂ $2^3\Sigma_g^+$ state: Observation and analysis [Text] / D. Li, F. Xie, L. Li, V.B. Sovkov, [et al.] // J. Chem. Phys. — 2007. — Vol. 126. — № 19. — P. 194314 (9 p.).
4. Vala, J. Coherent control of cold-molecule formation through photoassociation using a chirped-pulsed-laser field [Text] / J. Vala, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, [et al.] // Phys. Rev. A. — 2000. — Vol. 16. — № 1. — P. 013412 (12 p.).
5. DeMille, D. Enhanced sensitivity to variation of m_e/m_p in molecular spectra [Text] / D. DeMille, S. Sainis, J. Sage, [et al.] // Phys. Rev. Lett. — 2008. — Vol. 100. — № 4. — P. 043202 (4 p.).
6. Beloy, K. Effect of α variation on a prospective experiment to detect variation of m_e/m_p in di-



atomic molecules [Text] / K. Beloy, A. Borschevsky, V.V. Flambaum, P. Schwerdtfeger // *Phys. Rev. A*. — 2011. — Vol. 84. — № 4. — P. 042117(5 p.).

7. **Serov, V.N.** Split operator method for the non-adiabatic ($J = 0$) bound states and ($A \leftarrow X$) absorption spectrum of NO_2 [Text] / V.N. Serov, V.B. Sovkov, V.S. Ivanov, O. Atabek // *J. Chem. Phys.* — 2001. — Vol. 115. — № 14. — P. 6450–6458.

8. **Rees, A.L.G.** The calculation of potential-energy curves from band-spectroscopic data [Text] / A.L.G. Rees // *Proc. Phys. Soc. London*. — 1947. — Vol. 59. — № 336. — P. 998–1008.

9. **Sovkov, V.B.** Two-photon excitations of the Cs_2 $3^3\Sigma_g^+$ state: Assignment and analysis with the deformed *ab initio* potential [Text] / V.B. Sovkov, D. Li, V.S. Ivanov, [et al.] // *Chem. Phys. Lett.* — 2013. — Vol. 557. — P. 66–70.

10. **Совков, В.Б.** Многопараметрические модельные функции в задачах аппроксимации *ab initio* потенциалов и спектроскопических данных двухатомных молекул [Текст] / В.Б. Совков, В.С. Иванов, К.В. Минаев, М.С. Александров // *Оптика и спектроскопия*. — 2013. — Т. 114. — № 2. — С. 185–195.

11. **Xie, F.** Experimental investigation of the Cs_2 $a^3\Sigma_u^+$ triplet ground state: Multiparameter Morse long range potential analysis and molecular constants [Text] / F. Xie, V.B. Sovkov, A.M. Lyyra, [et al.] // *J. Chem. Phys.* — 2009. — Vol. 130. — № 5. — P. 051102 (4 p.).

12. **Xie, F.** Joint analysis of the Cs_2 $a^3\Sigma_u^+$ and 1_g ($3^3\Pi_{1g}$) states [Text] / F. Xie, Li Li, D. Li, V.B. Sovkov, [et al.] // *J. Chem. Phys.* — 2011. — Vol. 135. — № 2. — P. 024303 (7 p.).

13. **Beser, B.** Experimental investigation of the $^{85}\text{Rb}_2$ $a^3\Sigma_u^+$ triplet ground state: Multiparameter Morse long range potential analysis [Text] / B. Beser, V.B. Sovkov, J. Bai, [et al.] // *J. Chem. Phys.* — 2009. — Vol. 131. — № 9. — P. 094505 (6 p.).

14. **Strauss, C.** Hyperfine, rotational, and vibrational structure of the $a^3\Sigma_u^+$ state of $^{87}\text{Rb}_2$ [Text] / C. Strauss, T. Takekoshi, F. Lang, [et al.] // *Phys. Rev. A*. — 2010. — Vol. 82. — № 5. — P. 052514 (12 p.).

15. **Xie, F.** The hyperfine structure analysis of the K_2 $2^3\Sigma_g^+$ state [Text] / F. Xie, K.V. Minaev, V.B. Sovkov, [et al.] // *Chem. Phys. Lett.* — 2010. — Vol. 493. — № 4–6. — P. 238–241.

REFERENCES

1. **Lefebvre-Brion H., Field R.W.** The Spectra and Dynamics of Diatomic Molecules. San Diego, Elsevier, Academic Press, 2004. 766 p.

2. **Li L., Field R.W.** Direct observation of high-lying $^3\Pi_g$ states of the Na_2 molecule by optical-optical double resonance. *J. Phys. Chem.*, 1983, Vol. 87, №16, pp. 3020–3022.

3. **Li D., Xie F., Li L., Sovkov V.B., Ivanov V.S., Ahmed E., Lyyra A.M., Huennekens J., Magnier. S.** *J. Chem. Phys.*, 2007, Vol. 126, № 19, p. 194314.

4. **Vala J., Dulieu O., Masnou-Seeuws O.** Coherent control of cold-molecule formation through photoassociation using a chirped-pulsed-laser field. *Phys. Rev. A*, 2000, Vol. 16, № 1, p. 013412.

5. **DeMille D., Sainis S., Sage J.** Enhanced sensitivity to variation of m_e/m_p in molecular spectra. *Phys. Rev. Lett.* 2008, Vol. 100, № 4, p. 043202.

6. **Beloy K., Beloy K., Borschevsky A., Flambaum V.V., Schwerdtfeger P.** Effect of α variation on a prospective experiment to detect variation of m_e/m_p in diatomic molecules. *Phys. Rev. A*, 2011, Vol. 84, № 4, p. 042117.

7. **Serov V.N., Sovkov V.B., Ivanov V.S., Atabek O.** Split operator method for the non-adiabatic ($J = 0$) bound states and ($A \leftarrow X$) absorption spectrum of NO_2 . *J. Chem. Phys.*, 2001, Vol. 115, No. 14, p. 6450–6458.

8. **Rees A.L.G.** The calculation of potential-energy curves from band-spectroscopic data. *Proc. Phys. Soc. London*, 1947, Vol. 59, № 336, pp. 998–1008.

9. **Sovkov V.B., Li D., Ivanov V.S. et al.** Two-photon excitations of the Cs_2 $3^3\Sigma_g^+$ state: Assignment and analysis with the deformed *ab initio* potential. *Chem. Phys. Lett.*, 2013, Vol. 557, P. 66–70.

10. **Sovkov V.B., Ivanov V.S., Minaev K.V., Aleksandrov M.S.** Многопараметрические модельные функции в задачах аппроксимации *ab initio* потенциалов и спектроскопических данных двухатомных молекул. *Optics and Spectroscopy*, 2013, Vol. 114, № 2, pp. 185–195. (rus)

11. **Xie F., Sovkov V.B., Lyyra A.M. et al.** Experimental investigation of the Cs_2 $a^3\Sigma_u^+$ triplet ground state: Multiparameter Morse long range potential analysis and molecular constants. *J. Chem. Phys.*, 2009, Vol. 130, № 5, p. 051102 (4 p.).

12. **Xie F., Li Li, Li D., Sovkov V.B. et al.** Joint analysis of the Cs_2 $a^3\Sigma_u^+$ and 1_g ($3^3\Pi_{1g}$) states. *J. Chem. Phys.*, 2011, Vol. 135, № 2, p. 024303 (7 p.).

13. **Beser B., Sovkov V.B., Bai J. et al.** Experimental investigation of the $^{85}\text{Rb}_2$ $a^3\Sigma_u^+$ triplet ground state: Multiparameter Morse long range potential analysis. *J. Chem. Phys.*, 2009, Vol. 131, No. 9, p. 094505.

14. **Strauss C., Takekoshi T., Lang F. et al.** Hyperfine, rotational, and vibrational structure of the

$a^3\Sigma_u^+$ state of $^{87}\text{Rb}_2$. *Phys. Rev. A.*, 2010, Vol. 82, № 5, p. 052514.

15. Xie F., Minaev K.V., Sovkov V.B. et al.

The hyperfine structure analysis of the K_2 $2^3\Sigma_g^+$ state. *Chem. Phys. Lett.*, 2010, Vol. 493, № 4–6, pp. 238–241.

СКУБЛОВ Алексей Сергеевич — студент Санкт-Петербургского государственного университета.
198504, г. Санкт-Петербург, Ульяновская ул., 1
alex.s@018.net.il

СОВКОВ Владимир Борисович — доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник кафедры фотоники Санкт-Петербургского государственного университета.
198504, г. Санкт-Петербург, Ульяновская ул., 1
vladimir_sovkov@mail.ru

ИВАНОВ Валерий Сергеевич — доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник кафедры фотоники Санкт-Петербургского государственного университета.
198504, г. Санкт-Петербург, Ульяновская ул., 1
v_s_ivanov@mail.ru



ПРИБОРЫ И ТЕХНИКА ФИЗИЧЕСКОГО ЭКСПЕРИМЕНТА

УДК 519.6, 539.12, 539.1.074

*А.С. Серебряков, А.П. Мороз, Я.А. Бердников,
М.Б. Миллер, Ю.В. Ефремов, В.С. Хрунов*

ОСОБЕННОСТИ АМПЛИТУДНЫХ СПЕКТРОВ КРЕМНИЕВОГО ДЕТЕКТОРА ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ

*A.S. Serebryakov ¹, A.P. Moroz ², Ya.A. Berdnikov ³,
M.B. Miller ³, Yu.V. Efremov ³, V.S. Khrunov ³*

¹ JSC «COMITA»,

1 Roentgen St., St. Petersburg, 197101, Russia.

² St. Petersburg State Polytechnical University,

29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

³ Institute in Physical-Technical problems,

4 Kurchatova St., Dubna, 141980, Russia.

THE FEATURES OF THE SILICON GAMMA-RAY DETECTOR AMPLITUDE SPECTRA

В статье рассматриваются особенности регистрации гамма-излучения кремниевым детектором. Описанная модель переноса электронов предоставляет возможность учета неоднородных свойств детектора и позволяет получать удовлетворительно совпадающие с экспериментальными данными спектры излучения для различных энергий гамма-линий. В работе наглядно показано влияние эффекта неполного сбора заряда из чувствительного объема кристалла на амплитудный спектр детектора.

ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЯ, КРЕМНИЕВЫЙ ДЕТЕКТОР, КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ, НЕПОЛНЫЙ СБОР ЗАРЯДА.

The paper considers the peculiarities in gamma-ray spectra collection by silicon detector. The computer model which takes into account inhomogeneous charge collection in the detector volume allows calculation of correct spectra for essentially different gamma-line energies which coincide with the experimental spectra rather well. The influence of incomplete charge collection in the crystal sensitive volume by amplitude spectra is demonstrated.

GAMMA-SPECTROMETRY, SILICON DETECTOR, COMPUTER SIMULATION, INCOMPLETE CHARGE COLLECTION.

Кремниевый детектор большого объема, охлаждаемый Пельтье-кулером, входит в состав аппаратуры СПЕДОГ, предназначенной для регистрации и спектрометрии гамма-излучения исследовательских и промышлен-

ных ядерно-технических установок [1].

В отличие от германиевого детектора с высокой эффективностью регистрации гамма-излучения, спектры, полученные с кремниевым детектором, как правило, не

содержат пиков полного поглощения, но всегда имеют ярко выраженные комптоновские «хвосты». Благодаря последней особенности спектрометрии с помощью кремниевого детектора все же осуществима, а его преимущество состоит в том, что он может устойчиво работать в полях нейтронного излучения (в отличие от германиевого детектора).

Для расшифровки неизвестных спектров гамма-излучения, состоящих из произвольного набора линий, необходимо заранее измерить отклик блока детектирования на моноэнергетическое излучение различной энергии. Эти эксперименты ограничены достаточно коротким списком доступных гамма-излучающих изотопов, поэтому ясно, что необходимо дополнить измерения расчетами отклика для промежуточных энергий, причем это удобно сделать методом Монте-Карло [2].

Целью настоящей работы является создание расчетной модели, которая бы позволила получать правильный отклик детектора на линии произвольных промежуточных энергий. Наличие такой модели откроет возможности для решения обрат-

ной задачи: восстановления спектра неизвестных излучателей.

Очевидно, что расчетные спектры должны наилучшим образом совпадать с экспериментальными результатами для конкретных изотопных источников. В настоящей работе предпринята попытка точного расчета амплитудных спектров кремниевых детекторов, при этом рассмотрены два традиционных точечных источника типа ОСГИ (образцовые спектрометрические источники гамма-излучения): ^{137}Cs и ^{60}Co .

Геометрия облучения представлена на рис. 1. Показана упрощенная схема цилиндрического кристалла детектора без кольцевой канавки, обычно отделяющей его верхнюю часть большего диаметра D_1 от внутренней части меньшего диаметра D_2 .

Расчетная модель, разработанная ранее и использованная, например, в работе [3] для моделирования спектров неохлаждаемого кремниевого детектора, учитывает многократное рассеяние гамма-излучения в пределах кристалла детектора, а также образование и перенос вторичных фото- и комптоновских электронов.

Потери энергии вдоль трека электрона суммируются, когда он находится в чувствительной зоне детектора, а по окончании моделирования всех электронов, соответствующих одному фотону от источника, эта сумма потерь определяет канал искомого спектра, в который происходит запись.

Для расчетов были использованы сечения взаимодействия фотонов с кремнием из книги [4]. Когерентное рассеяние фотонов не учитывалось, но сечение этого процесса вычиталось из полного сечения взаимодействия; таким образом увеличивались длины свободных пробегов фотонов между последовательными актами взаимодействия.

Первое взаимодействие фотона с кристаллом детектора всегда инициируется в его объеме, при этом данной истории приписывается статистический вес w :

$$w = 1 - \exp(-\mu(E) \cdot \rho \cdot S), \quad (1)$$

где $\mu(E)$ — полный массовый коэффициент поглощения для фотона с энергией E , ρ — плотность материала (2,42 г/см³ для кремния), S — максимально возможный путь

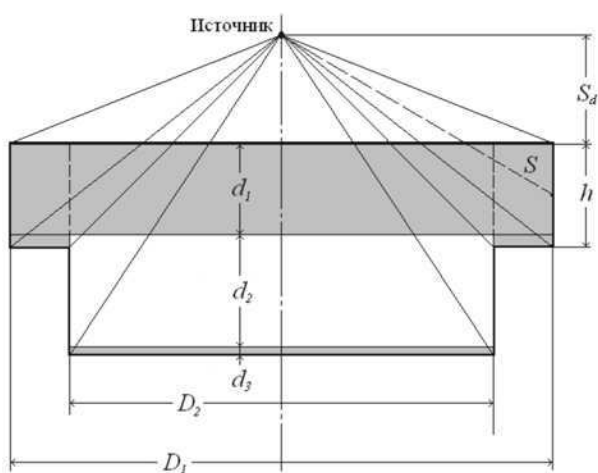


Рис. 1. Геометрия облучения кремниевого детектора источником гамма-излучения:

S_d — расстояние от источника до кристалла;
 S — максимально возможный путь первичного фотона в материале детектора для заданного направления движения; d_2 — толщина чувствительной зоны; h , d_1 , d_3 — высота и толщины мертвых зон. Кольцевая мертвая зона расположена между цилиндрами диаметрами D_1 и D_2



первичного фотона в материале детектора для заданного направления движения первичного фотона (см. рис. 1).

Значение величины w , которая записывается в канал искомого спектра по окончании каждой истории, существенно зависит от попадания направления движения первичного фотона внутрь различных угловых секторов, показанных на рис. 1.

Угол вылета возникающих вторичных фотоэлектронов относительно направления движения фотона первичного фотона моделируется в соответствии с распределениями либо Фишера, либо Заутера, а критерием служит неравенство

$$E_e < 2,5 \cdot Z - 0,5 \cdot E_b, \quad (2)$$

где E_e — энергия электрона, E_b — энергия связи на K -оболочке (1,839 кэВ для кремния).

Если это условие (2) выполняется, то для моделирования выбирается распределение Фишера.

Для моделирования некогерентного рассеяния используется известная схема Кана, при этом не учитывается связь орбитального электрона с атомом.

Движение вторичных электронов по своим траекториям описывается в рамках традиционной модели группировки столкновений (см. работу [5]). На каждом шаге траектории средняя потеря энергии подсчитывается по теории Бете — Блоха, а угловое отклонение выбирается из таблиц распределения Гоудсмита — Саундерсона (готовятся предварительными расчетами).

При моделировании пространственных поперечных смещений Δx и Δy на шаге используется нормальное распределение, а продольное смещение Δz связано с длиной шага Δs и углом отклонения θ на шаге следующим соотношением:

$$\Delta z = \frac{1}{2} \Delta s (1 + \cos \theta). \quad (3)$$

Описанная модель переноса электронов дает результаты, практически не отличающиеся от расчетных результатов более современного комплекса программ MCC 3D [6] по решению типичных тестовых задач. В то же время она является моделью от-

крытого типа и дает возможность учесть неоднородные свойства детектора в процессе траекторного моделирования, чего не позволяет ни один из известных имитационных программных пакетов.

Расчеты по моделирующей программе проводились для следующих значений геометрических размеров (см. рис. 1): $D_1 = 24$ мм, $D_2 = 17$ мм, $S_d = 19,3$ мм, $h = 7,0$ мм, $d_1 = 3,9$ мм, $d_2 = 7,0$ мм, $d_3 = 0,5$ мм.

Для того чтобы показать, как пробег вторичного электрона укладывается в объеме кристалла детектора, получена зависимость бетевского пробега (полная длина пути электрона вдоль его трека) от энергии (рис. 2).

В расчетах спектров потерь энергии предполагалось, что вторичные электроны, образованные в кольцевой мертвой зоне, не могут внести вклад в искомым спектр. Однако фотоны, рассеянные в этой зоне, а их относительное число весьма велико, могут попасть в чувствительную зону и в две плоские мертвые зоны, где они образуют вторичные электроны. В таком случае они способны дать вклад в регистрируемый спектр потерь.

Для имитации конечного энергетического разрешения детектирующей системы результирующий спектр потерь энергии в чувствительном объеме детектора сворачивался с гауссианом переменной ширины. При этом предполагалось, что для зарегистрированной потери энергии $\Delta E = 279$ кэВ разрешение FWHM детектора, определяемое как ширина пика на половине высо-

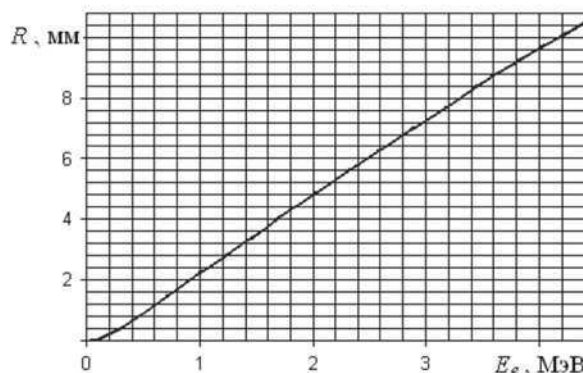


Рис. 2. Зависимость длины полного пробега вторичного электрона в кремнии от его энергии

ты, составляет 17 кэВ и что оно зависит от энергии в виде $\text{FWHM} = C \cdot \sqrt{E_k}$, где E_k — энергия, соответствующая середине канала с номером k , C — постоянная.

Процедура свертки означает суммирование по каналам (то есть по индексу k):

$$A_i = \sum_k \frac{F_k}{\sigma_k \sqrt{2\pi}} \cdot \exp\left(-\frac{(i-k)^2}{2\sigma_k^2}\right), \quad (4)$$

где A_i — итоговый амплитудный спектр; F_k — спектр потерь энергии, найденный с помощью моделирующей программы;

$$\sigma_k = \text{FWHM}(E_k)/2,355.$$

После проведения процедуры свертки расчетные амплитудные спектры нормируются на экспериментальные спектры по площади.

Типичные результаты расчетов амплитудных спектров показаны на рис. 3 (кривые 3, 4) совместно с экспериментальными данными (кривые 1, 2). Значения вероятностей выхода линий гамма- и рентгеновского излучения взяты из справочника [7].

Для линий $K_{\alpha\beta}$ бария (Ba) с энергиями 32,06 и 36,54 кэВ дополнительно учтено частичное поглощение (составляет примерно 50 %) этого излучения в корпусе блока детектирования, выполненном из дюралюминия.

Объем статистики вычислений в моделирующей программе составлял $5 \cdot 10^5$ первичных фотонов от источника.

Несмотря на то, что вдоль треков вторичных электронов аккуратно учитывалось частичное поглощение энергии в обширных мертвых зонах, наблюдалось заметное несовпадение расчетных результатов с экспериментом (см. рис. 3, а, б).

Существенные различия наблюдаются, главным образом, в области малых зарегистрированных потерь энергии — ниже 200 кэВ.

Из опыта предыдущего исследования кремниевых детекторов малого объема, предназначенных для регистрации рентгеновского излучения [8], было предложено ввести в моделирующую программу радиальную функцию сбора заряда $C(r)$, оценивающую вероятность регистрации потери энергии $\Delta E'$ при поглощении энергии ΔE

в заданной точке чувствительного объема.

Эта радиальная функция $C(r)$, аргумент которой меняется в пределах $0 < r < 1/2 D_2$, очевидно, равна единице в центральной области чувствительной зоны и спадает по ее краям в силу ослабления электрического поля, приложенного вдоль оси детектора (а также, возможно, по другим причинам).

Таким образом, если учитывать, что $\Delta E' \leq \Delta E$, то введение этой функции в процесс моделирования отклика детектора будет способствовать увеличению мягкой части расчетных спектров, а значит должно привести к исправлению ситуации, показанной кривыми 3, 4 на рис. 3, а, б.

Выбор конкретного вида функции $C(r)$ осуществлялся из следующих простых соображений. В некоторой точке $r = r_c$ постоянная $C(r) = 1$ должна плавно переходить в ниспадающую часть, следовательно, производная $(dC(r)/dr)_{r=r_c} = 0$. Далее, функция с перегибом падает до значения C_f , близкого к нулю, но не обязательно равного. Наиболее удобный вид функции такого рода — это правая часть нормального распределения (гауссиана).

На рис. 3, в, г показано сравнение расчетных спектров с экспериментальными спектрами в случае, когда r_c составляет 70 % от полного радиуса чувствительной зоны, а величина C_f равна 10^{-3} .

Как видно из этих рисунков, наблюдается значительное улучшение совпадения расчетных и экспериментальных данных. Оставшиеся различия, вероятно, связаны с тем, что не учтено рассеяние фотонов в близлежащих конструкциях, окружающих детектор.

Среди этих конструкций особенно важны те, которые находятся непосредственно за кристаллом детектора и входят в состав системы охлаждения. Процесс обратного рассеяния фотонов от этих близлежащих конструкций будет включен в моделирующую программу на следующем этапе исследовательских работ.

Отметим также, что в решении задачи о восстановлении спектров неизвестных гамма-излучателей значимую роль может играть и многократное рассеяние фотонов на объектах, окружающих источники излу-

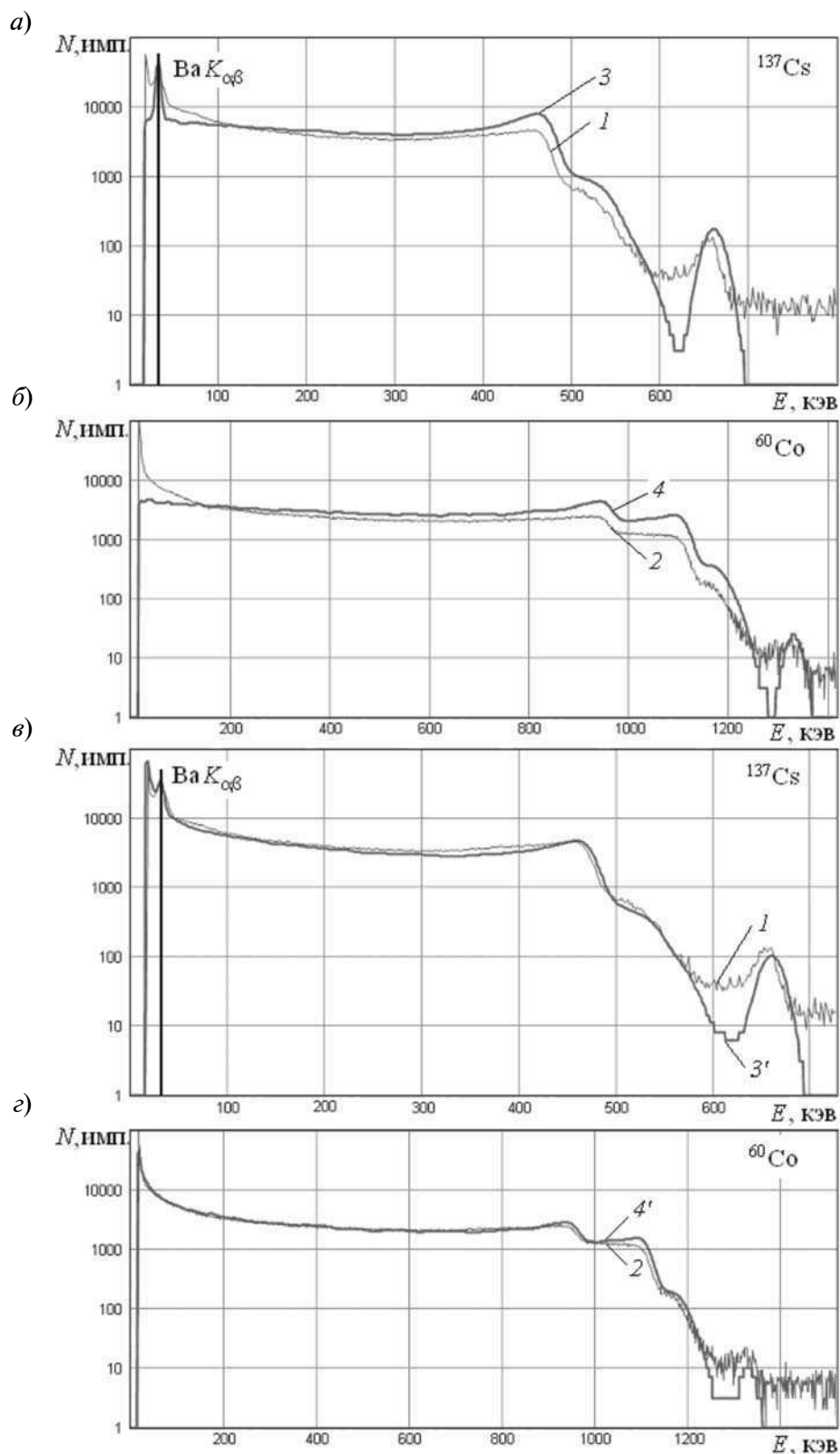


Рис. 3. Сравнение экспериментальных (1, 2) и расчетных (3, 3', 4, 4') амплитудных спектров кремниевого детектора для двух источников гамма-излучения: ^{137}Cs (а, в) и ^{60}Co (б, г). Расчетные спектры получены без учета (3, 4) и с учетом (3', 4') радиальной функции сбора заряда

чения. Но и в этом случае моделирующая программа может быть легко дополнена соответствующими имитационными процедурами для учета данного эффекта.

Моделирование переноса вторичных электронов имеет смысл, ввиду их относительно малой длины пробега, только в объеме кристалла детектора и, возможно, в объемах самых ближайших к нему конструкций.

При увеличении энергии электронов свыше 2–3 МэВ следует включить эффект образования пар и обратить внимание на возрастающее влияние процессов образования и переноса тормозного излучения.

Однако вероятности этих процессов в кремнии не очень велики: вклад сечения образования пар для энергии в области 3 МэВ составляет 2 %, а относительный

вклад тормозных потерь в полное значение величины удельных потерь энергии ($-dE_e/ds$) составляет не более 4 %.

Основной вывод по проделанной работе состоит в том, что новая расчетная модель, учитывающая неоднородности сбора заряда по объему детектора, позволяет получать правильные, то есть удовлетворительно совпадающие с экспериментом спектры излучения с существенно различными энергиями гамма-линий. Следовательно, данная модель применима для промежуточных и более высоких энергий, и, значит, в перспективе она даст возможность восстановления спектров неизвестных излучателей решением соответствующей системы линейных уравнений, к которой сводится эта обратная задача.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Трыков, Л.А.** Спектрометр-дозиметр гамма-излучения СПЕДОГ [Текст] / Л.А. Трыков, В.А. Левченко, Д.М. Бабанак // Приборы и техника эксперимента. — 2005. — № 3. — С. 1–6.
2. **Kluson, J.** Calculation of responses and analysis of experimental data for silicon gamma spectrometer [Text] / J. Kluson, B. Jansky // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section A. — 2009. — Vol. 619. — P. 186–189.
3. **Грудский, М.Я.** Расчет характеристик ППД-дозиметра [Текст] / М.Я. Грудский, А.Г. Лебедев, А.С. Серебряков, В.В. Смирнов // «Ядерная спектроскопия и структура атомного ядра»: Тез. докл. Междунар. совещания. — СПб.: Наука, 1992. — 459 с.
4. **Маренков, О.С.** Квантовомеханическая версия коэффициентов ослабления характеристического рентгеновского излучения [Текст] / О.С. Маренков, М.Э. Эпштейн, Б.Г. Комков и др. // Аппаратура и методы рентгеновского анализа. — Л.: Машиностроение, 1980. — Вып. 24. — С. 214–216.
5. **Аккерман, А.Ф.** Моделирование траектории заряженных частиц в веществе [Текст] / А.Ф. Аккерман. — М.: Энергоатомиздат, 1991. — 200 с.
6. **Багаев, К.А.** Программа для имитационного трехмерного моделирования систем детектирования и регистрации ионизирующего излучения на базе развитого графического интерфейса [Текст] / К.А. Багаев, С.С. Козловский, И.Э. Новиков // Журнал «АНРИ». — 2007. — № 4. — С. 35–40.
7. **Хольнов, Ю.В.** Характеристики излучений радиоактивных нуклидов, применяемых в народном хозяйстве [Текст] / Ю.В. Хольнов, В.П. Чечев, Ш.В. Камынов [и др.] — М.: Атомиздат, 1980. — 375 с.
8. **Мороз, А.П.** Влияние конструктивных особенностей кремний-литиевого детектора на форму амплитудного спектра [Текст] / А.П. Мороз, А.С. Серебряков, Я.А. Бердников // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2012. — № 2 (146). — С. 104–111.

REFERENCES

1. **Trykov L.A., Levchenko V.A., Babankov D.M.** Gamma-ray spectrometer-dosimeter SPEDOG. Instruments and technique of experiment, 2005, pp. 1–6. (rus)
2. **Kluson J., Jansky B.** Calculation of Responses and Analysis of Experimental Data for Silicon Gamma Spectrometer. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section A, Vol. 619, 2009, pp. 186–189.
3. **Grudskiy M.Ya., Lebedev A.G., Serebryakov A.S., Smirnov V.V.** Calculation of the SCD-dosimeter characteristics. Nuclear spectrometry and atomic nucleus structure conference. St. Petersburg, Nauka, 1992, 459 p. (rus)
4. **Marenkov O.S., Epshtein M. E., Komkov B.G et al.** The wave-mechanical version of x-ray



characteristic radiation attenuation coefficients. Equipment and methods for X-ray analysis. Leningrad, Mashinostroenie, 1980, Vol. 24, pp. 214–216. (rus)

5. **Akkerman A.F.** Simulation of charged particle trajectories in matter. Moscow, Energoatomizdat, 1991, 200 p. (rus)

6. **Bagaev K.A., Kozlovskiy S.S., Novikov I.E.** Program for the 3D simulation of detector systems and ionizing radiation detection on the basis of developed graphical interface. «ANRY» journal,

2007, Vol. 4, pp. 35–40. (rus)

7. **Khol'nov U. V., Chechnev V.P., Kaminov Sh.V. et al.** Radiation characteristic of radioactive nuclides used in national economics. Moscow, Atomizdat, 1980, 375 p. (rus)

8. **Moroz A.P., Serebryakov A.S., Berdnikov Ya.A.** The influence of constructional features of Si(Li) detector on the amplitude spectrum form. St. Petersburg State Polytechnical University Journal, Physics and Mathematics, 2012, № 2 (146), pp. 104–111. (rus)

СЕРЕБРЯКОВ Александр Сергеевич — кандидат физико-математических наук, заместитель генерального директора по науке ЗАО «КОМИТА».

197101, г. Санкт-Петербург, ул. Рентгена, 1
alexs@comita.ru

МОРОЗ Андрей Петрович — аспирант кафедры экспериментальной ядерной физики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
andrey.p.moroz@gmail.com

БЕРДНИКОВ Ярослав Александрович — доктор физико-математических наук, профессор, заведующий кафедрой экспериментальной ядерной физики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
berdnikov@spbstu.ru

МИЛЛЕР Михаил Борисович — кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Института физико-технических проблем.

141980, Московская область, г. Дубна, ул. Курчатова, 4
iftp@dubna.ru

ЕФРЕМОВ Юрий Валентинович — ведущий инженер Института физико-технических проблем.

141980, Московская область, г. Дубна, ул. Курчатова, 4
iftp@dubna.ru

ХРУНОВ Владимир Семенович — член-корреспондент РАН, главный инженер Института физико-технических проблем.

141980, Московская область, г. Дубна, ул. Курчатова, 4
iftp@dubna.ru

УДК 539.1.07;539.1.074;

*Я.А. Бердников, А.Я. Бердников, В.А. Евсеев, Н.М. Мифтахов,
В.Н. Никулин, В.М. Самсонов, О.П. Тарасенкова*

МОДЕРНИЗАЦИЯ МЮОННОГО ПЛЕЧА И ПОДДЕРЖКА ПУЧКОВОЙ ТРУБЫ В ЭКСПЕРИМЕНТЕ ALICE НА БОЛЬШОМ АДРОННОМ КОЛЛАЙДЕРЕ

*Ya.A. Berdnikov¹, A.Ya. Berdnikov¹, V.A. Yevseyev²,
N.M. Miftakhov², V.N. Nikulin², V.M. Samsonov¹, O.P. Tarasenkova²*

¹ St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., Saint-Petersburg, 195251, Russia.

² B.P. Konstantinov Petersburg Nuclear Physics Institute,
Orlova Roscha, Gatchina, 188300, Russia.

MUON ARM UPGRADE AND BEAMPIPE SUPPORT IN ALICE EXPERIMENT AT LHC

В работе описываются интеграционные аспекты модернизации мюонного спектрометра установки ALICE, в частности поддержка пучковой трубы. Рассмотрены два варианта поддержки. Приведено описание тестового стенда, предназначенного для экспериментальной оценки неопределенностей механической модели. Продемонстрировано разумное описание полученных результатов измерений простой моделью сильфонов.

ЭКСПЕРИМЕНТ ALICE, МЮОННЫЙ СПЕКТРОМЕТР, ПОДДЕРЖКА ПУЧКОВОЙ ТРУБЫ, ТЕСТОВЫЙ СТЕНД, БОЛЬШОЙ АДРОННЫЙ КОЛЛАЙДЕР.

The paper describes the integration aspects of the ALICE Muon Arm upgrade, the beam-pipe support in particular. Two options were considered. The test bench built in order to estimate the uncertainties in the mechanical analysis caused by the bellow model was described. It was also demonstrated that simple model of the bellows gives reasonable description of the results.

ALICE EXPERIMENT, MUON SPECTROMETER, BEAMPIPE SUPPORT, TEST BENCH, LARGE HADRON COLLIDER.

Статья посвящена некоторым аспектам модернизации мюонного спектрометра установки ALICE (A Large Ion Collider Experiment) [1, 2] на Большом адронном коллайдере (LHC). Мюонные спектрометры предназначены для изучения реакций с образованием мюонов в конечном состоянии, например для изучения выходов мезонов, распадающихся на мюон-антимюонную пару [3, 4]. Выходы различных мезонов являются одним из основных источников информации о состоянии вещества, так как при образовании кварк-глюонной плазмы ожидается существенное подавление ве-

роятности их образования. Исследования мюонных каналов распада дают возможность получать информацию, взаимодополняющую по отношению к другим детекторам, и позволяют судить о состоянии вещества, в котором образовались данные продукты столкновения. Идентификация связанных состояний производится статистически по пикам в спектре инвариантной массы мюонных пар.

Принцип выделения мюонов основан на значительно более высокой, по сравнению с другими частицами, проникающей способности мюонов. Это свойство также

обеспечивает более «чистые» измерения, по сравнению с электронным каналом, где уже небольшие препятствия на пути электрона приводят к рождению ливня, серьезно затрудняющего анализ данных.

Мюонный спектрометр установки ALICE и МФТ

Для выделения мюонов в установке ALICE использован поглотитель сложной структуры длиной более четырех метров, что составляет около десяти адронных длин взаимодействия и обеспечивает надежное выделение мюонов. Мюоны с энергией более 5 ГэВ пройдут сквозь него, лишь слегка изменив свой импульс и направление, в то время как более 99 % заряженных частиц и фотонов задерживаются поглотителем. После поглотителя на установке расположено пять станций трековых камер и дипольный магнит. Последний имеет длину около 5 м, создает магнитное поле до 0,7 Тл (интеграл поля около 3 Тл·м), отклоняющее частицы в вертикальном направлении. Две первые трековые станции расположены до магнита, одна внутри, а последние две — за магнитом. Измерив изгиб траектории частицы в магнитном поле, можно восстановить ее импульс. Для достаточно точного восстановления импульса требуется простран-

ственное разрешение в отклоняющей плоскости около 0,1 мм.

Существенным ограничением имеющегося мюонного плеча установки ALICE является отсутствие информации о треках частиц в области от точки взаимодействия до начала поглотителя. Качественно новую физическую информацию можно получить, если дополнить мюонный спектрометр третьей подсистемой, измеряющей положение вершины распада и угол разлета мюонной пары с высокой точностью: мюонным форвардным трекером (МФТ) [5, 6]. Определение смещения вершины распада относительно основной вершины взаимодействия позволит определить канал рождения тяжелого кваркония.

Кроме того, определение угла разлета мюонов существенно улучшит массовое разрешение легких мезонов. Действительно, при $p_\mu \gg m_\mu$ инвариантная масса димюона может быть записана в виде

$$M_{\mu\mu} = \sqrt{2p_1 p_2 (1 - \cos \Theta)} \approx \sqrt{2p_1 p_2} \Theta,$$

где p_1, p_2 — импульсы мюонов, Θ — угол между их направлениями; формула приблизительно верна для малых углов.

При димюонных распадах мезонов малых масс импульсы мюонов сравнительно малы, и многократное рассеяние сильно

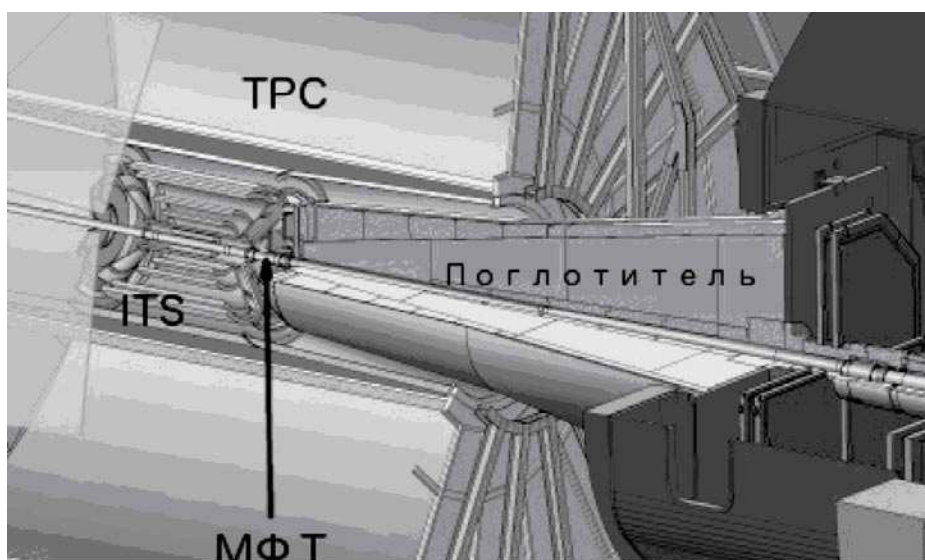


Рис. 1. Местоположение МФТ (на рисунке не показан): между внутренним трекером (ITS) и поглотителем мюонного спектрометра (показан в разрезе) во внутренней полости времяпроекционной камеры (TPC)

искажает направление исходных частиц, восстановленное по информации трековых станций.

Моделирование установки продемонстрировало достаточную эффективность соответствия между треками, зарегистрированными МФТ, и трековыми станциями мюонного спектрометра.

Проектируемая подсистема должна состоять из пяти трековых плоскостей, образованных кремниевыми пиксельными детекторами с размером чувствительного элемента 25 мкм. Плоскости должны располагаться между точкой взаимодействия пучков (IP LHC – Interaction Point LHC) и полностью перекрывать угловой захват спектрометра (от 3° до 9° по полярному углу и 360° по азимуту). Следует отметить весьма ограниченный доступ к будущему детектору (рис. 1): сверху и сбоку расположены корпус времяпроекционной камеры (Time Projection Chamber – TPC) и элементы внутреннего трекера ALICE (Inner Tracker System – ITS), справа – поглотитель мюонного спектрометра.

Поддержка трубы пучка и МФТ

Пучки LHC в области столкновений проходят в специальной трубе, изготовленной из бериллия и установленной вблизи

точки столкновений. Во время модернизации ALICE планируется уменьшить диаметр этой трубы с 58 до 36 мм. При этом зазор между трубой и центральным слоем ITS предполагается довести до 2 мм. Это означает, что допустимые отклонения от номинального положения трубы должны быть не более 1 мм. Труба крепится с двух концов на фланцах. Один конец трубы закреплен на пучковой трубе LHC и неподвижен, в то время как другой расположен на носовой части поглотителя мюонного спектрометра, который может менять свое положение по вертикали и горизонтали в пределах ± 10 мм от оси пучка в зависимости от магнитного поля, температуры и других факторов. Для компенсации этих движений в трубу добавлена сильфонная группа, состоящая из двух алюминиевых сильфонов, параметры которых [7] приведены в первом столбце табл. 1.

Для стабилизации положения трубы необходимо поместить ее крепление между внутренними слоями ITS и сильфонной группой. Задача осложняется тем, что эту область перекрывают выступающие внешние слои ITS.

Предполагается, что МФТ должен вдвигаться в тоннель TPC по специальным направляющим вплоть до установки на свое

Таблица 1

Характеристики сильфонов, поставляемых разными фирмами

Характеристика	Величина, предоставляемая фирмой-изготовителем			
	CERN (I)	Саранский приборный завод (II)	Apel Bellows (Россия) (III)	Skodock Verwaltungs und Vertriebs GmbH (Германия) (IV)
Материал (марка)	Алюминиевый сплав (AA5803)	Латунь (Л80)	Нержавеющая сталь AISI 321 (X18H10T)	Нержавеющая сталь (SK12112012) (AISI 316L)
Толщина стенки, мм	0,30		0,15	
Диаметр внешний, мм	53,3	50,0	50,0	52,0
Диаметр внутренний, мм	34,2	34,4	36,0	36,0
Общая длина, мм	38,0	41,8	40,0	38,0
Шаг гофра, мм	2,533	2,200	2,350	2,235
Число гофров	9			8

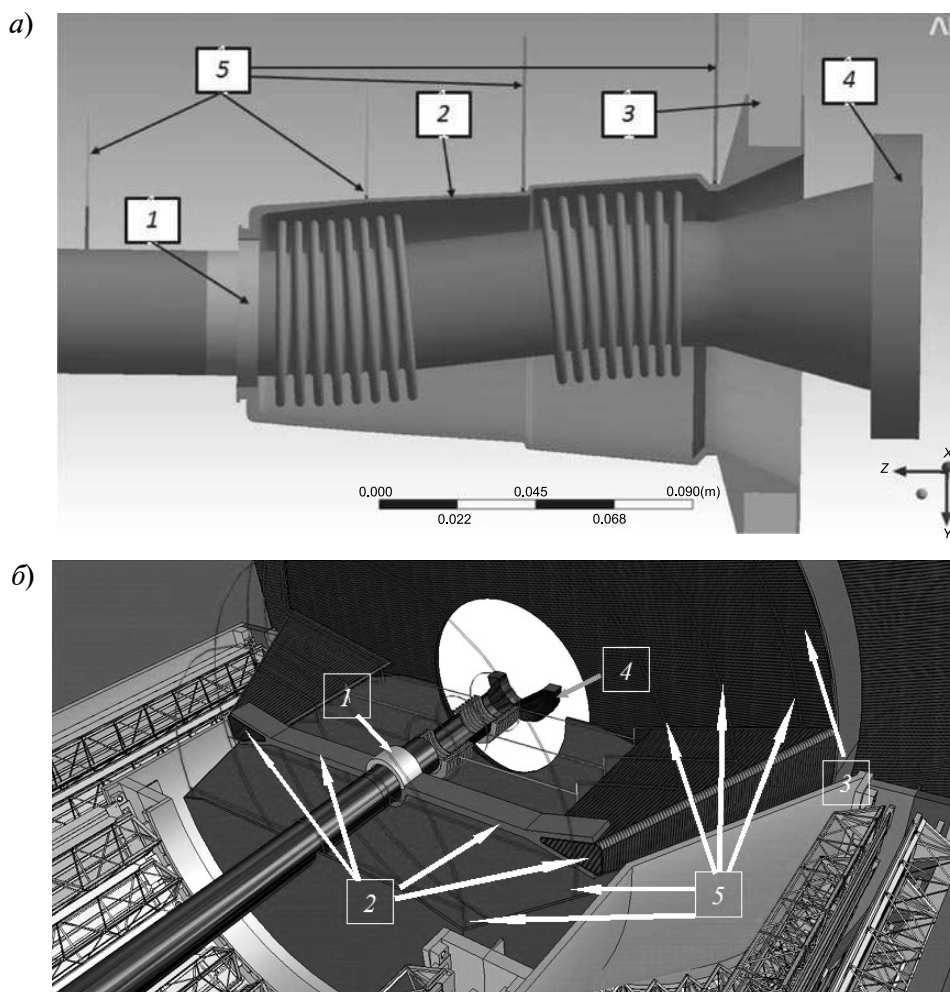


Рис. 2. Две концепции системы поддержки трубы. Цифрами обозначены:
1 – опорное кольцо, 2 – система поддержки, 3 – опорная панель,
4 – фланец трубы поглотителя 5 – камеры МФТ

место, а затем будет вводиться ITS. Такой сценарий позволит обеспечить доступ к детектору во время коротких перерывов (длительностью 1 – 2 месяца), то есть без извлечения ТРС. В настоящее время пучковая труба крепится к детектору FMD, на месте которого будет расположен МФТ, однако такой способ крепления не позволяет осуществлять перемещения детектора из-за опасности повреждения трубы. Поэтому было предложено крепить систему поддержки трубы на опорную панель, установленную в полости ТРС в промежутке между окончанием ITS и началом поглотителя мюонного спектрометра.

Один из предложенных вариантов крепления пучковой трубы представлен на

рис. 2, а. На упомянутой выше опорной панели установлен конус, изготовленный из бериллия, заканчивающийся опорным кольцом. Бериллий был выбран как материал, обладающий, с одной стороны, малыми плотностью и атомным весом, с другой, — уникальными прочностными характеристиками, что позволяет сделать конус тонким, сводя к минимуму вторичные рассеяния и рождение фоновых частиц на нем.

Второй вариант крепления показан на рис. 2, б. Поддерживающая структура крепится на клиновидных выступках опорной панели, соединенных системой поддержки, фиксирующей опорное кольцо в необходимом положении. Систему поддержки и выступы предполагается сделать (как и опор-

ную панель) из композитного материала на основе углепластика с пористым наполнителем.

Оба варианта крепления трубы были исследованы с помощью программного комплекса ANSYS [8]. В обе модели была включена труба (ее структура и размеры согласованы с Вакуумной группой CERN), а также та или иная система поддержки. К сожалению, имеющаяся версия конструкции трубы все еще является предварительной, а сильфоны, которые предложены для использования в трубе, пока не изготовлены, так как для их производства требуется около девяти месяцев с момента окончательного решения о дизайне трубы. Именно механические свойства сильфонов представляют наибольшую неопределенность в анализе [9]. В качестве начального приближения использовалась модель, в которой толщина стенок сильфона постоянна по всей его поверхности.

В процессе оптимизации удалось так подобрать точки крепления трубы, что ее прогибы в критических областях не превышают 1 мм для первого варианта (см. рис. 2, а) и 0,5 мм для второго (рис. 2, б), а образующиеся при смещениях поглотителя напряжения находятся на безопасном уровне. Величина реакции опоры в точке крепления трубы 4 оценивается в 18,5 Н.

Описание тестового стенда

Для проверки применимости конечно-элементного анализа в использованных приближениях было принято решение экспериментально воспроизвести аналогичные условия на стенде и сравнить эти данные при использовании различных сильфонов с полученными на базе модели в программном комплексе ANSYS. Общий вид изготовленного стенда показан на рис. 3. В соответствии с ним была построена модель в системе конечно-элементного ANSYS.

В построенной модели сильфонная группа, состоящая из двух сильфонов 1, соединена с отрезком трубы 7 длиной 600 мм.

Торец трубы 2 закреплен по трем координатам (смещения DX , DY и DZ фиксированы), вращения вокруг всех осей координат свободны.

Торец сильфонной группы 3 позволяет выполнять смещения по координате Y на расстояния от 0 до минус 10 мм, по вращениям и остальным координатам он фиксирован.

Узел подвеса трубы свободен по вращению по всем осям; положение по осям X и Y фиксировано.

Длина отрезка трубы 7 была выбрана так, чтобы изгибающий момент трубы в точке подвеса был близок по величине моменту, возникающему в полномасштабной

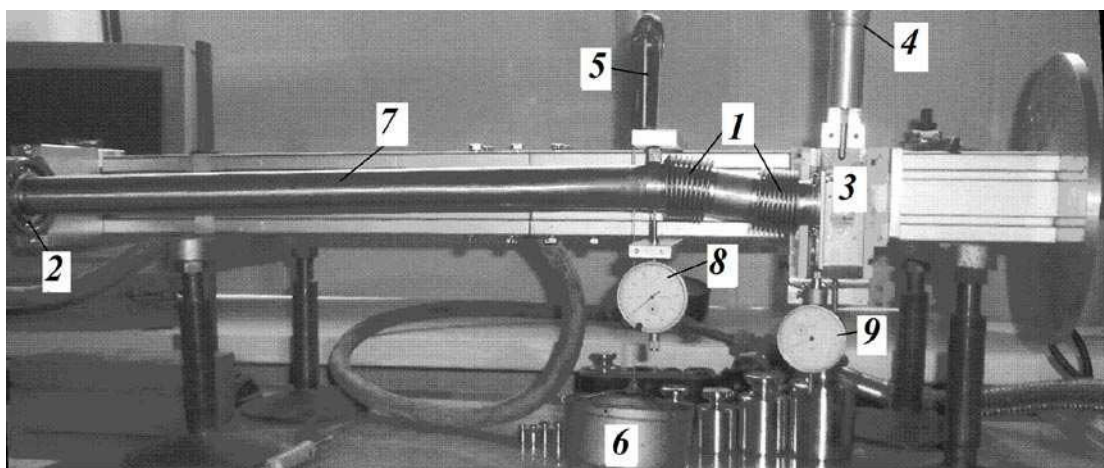


Рис. 3. Общий вид стенда для измерения параметров сильфонной группы:
1 – сильфонная группа; 2 – торец трубы в подшипнике; 3 – торец сильфонной группы;
4 – механизм регулируемого смещения сильфона; 5 – узел подвеса с грузом 6; 7 – вакуумированная труба; 8, 9 – измерители смещения точки подвеса трубы и смещения торца сильфонной группы



модели (где составная труба имеет длину более 5 м).

Технические характеристики испытательного стенда

Механическая конструкция испытательного стенда воспроизводит условия, которые возникают в реальной пучковой трубе при смещении абсорбера на расстояние до 10 мм в какую-либо сторону. Стенд имеет массивное основание, предназначенное для компоновки и крепления основных узлов стенда и обеспечивающее проведение испытаний образцов в двух положениях: горизонтальном и вертикальном. Стенд оборудован механизмом перемещения 4 для регулируемого смещения (до 10 мм) торца сильфонной группы 3 в направлении, перпендикулярном горизонтальной оси. Степени свободы торца трубы 2, то есть фиксации трубы по координатам и ее свободное вращение по всем осям, обеспечиваются подшипником; туда же подведен шланг форвакуумного насоса для откачки трубы 7. В состав стенда входят также измерительные устройства 8 и 9, предназначенные для определения смещений креплений трубы в точках 3 и 5.

Порядок проведения стендовых испытаний

1. Лабораторный образец двухсильфонного компенсирующего устройства устанавливается в опору механизма крепления трубы стенда в вертикальном положении.

2. Отмечается начальное показание индикатора смещения точки поддержки 8, установленного в месте соединения сильфонного компенсатора и трубы.

3. Свободный конец сильфонного компенсатора устанавливается в механизме перемещения при соблюдении двух условий:

показания индикатора 8 не должны изменяться;

значение длины сильфонного компенсатора должно сохраниться.

4. Конструкция стенда разворачивается в горизонтальное положение, после чего производится смещение торца сильфонной группы по индикатору 9 на желаемое состояние.

5. В месте соединения сильфонного компенсатора с трубой устанавливается груз 6, вес которого подбирается так, чтобы воспроизвести начальные показания индикатора 8, то есть вернуть положение трубы 7 в исходное состояние.

Ввиду того, что необходимые нам алюминиевые сильфоны не выпускаются промышленностью, для экспериментальных исследований мы использовали доступные нам образцы сильфонов со сходными характеристиками (см. табл. 1).

Результаты измерений

В ходе испытаний на стенде были измерены механические характеристики данных сильфонов при различных нагрузках. Результаты измерений сведены в табл. 2. В усредненное измеренное значение силы реакции опоры (столбец 4) введена поправка на силу давления измерительного штифта индикатора, которая составляет 0,83 Н. Видно, что в результате проведенных исследований установлено весьма близкое совпадение расчетных и экспериментальных данных, с разницей, не превышающей в среднем 2,5 Н. Точность измерения силы реакции опоры составляет около 5 г, что обуславливает относительную точность измерений, приведенную в табл. 2 и 3.

Для сильфона, изготовленного фирмой (IV), была измерена зависимость реакции опоры от величины смещения фланца (табл. 3). Набор полученных результатов с поправкой на силу давления измерительного штифта на трубу, описывается моделью с точностью, не превышающей 10 %. Это демонстрирует применимость предложенного описания для сильфонов с различными типоразмерами, изготовленных из разных материалов, и дает основания доверять предсказаниям модели и для случая алюминиевых сильфонов.

На основании полученных результатов можно ожидать, что расчетная величина реакции опоры 18,5 Н, полученная из анализа в рамках комплекса ANSYS для алюминиевых сильфонов, изготовленных в CERN, также будет близка к реальной. Разница между экспериментальными и тео-

Таблица 2

Сравнение расчетных и экспериментальных данных по силе реакции опоры при использовании сильфонов, изготовленных различными фирмами

Фирма-изготовитель	Расчетная (ANSYS), Н	Измеренная на стенде, Н	Усредненное значение с поправкой, Н	Отклонение экспериментального значения от расчетного, %
(II)	18,5	21,5 20,0 18,0 19,5 20,5	20,7	$11,0 \pm 0,3$
(III)	22,4	24,0 23,5 25,0 25,5 25,3	25,5	$12,0 \pm 0,2$
(IV)	23,2	24,0 24,3 24,0 25,5	25,2	$8,0 \pm 0,2$

Примечания:

1. Номера фирм-изготовителей соответствуют приведенным в табл. 1.
2. В усредненное значение силы реакции опоры введена поправка на силу давления измерительного штифта индикатора (0,83 Н).

Таблица 3

Экспериментальная и расчетная зависимости реакции опоры от смещения имитатора абсорбера для сильфона, изготовленного фирмой IV (Германия)

Величина смещения, мм	Сила реакции опоры, Н		Отклонение экспериментального значения от расчетного, %
	Расчетная (ANSYS)	Измеренная с поправкой*	
–2	4,6	4,71	$2,34 \pm 0,87$
–4	9,3	9,36	$0,64 \pm 0,54$
–6	13,9	14,36	$3,20 \pm 0,36$
–8	18,6	19,86	$6,34 \pm 0,27$
–10	23,2	25,22	$8,01 \pm 0,22$

*См. примечание 2 к табл. 2

ретическими данными, по-видимому, обусловлена тем, что модель была создана в предположении постоянного значения толщины стенки сильфона, что, скорее всего, не соответствует реальности.

Таким образом, полученные в статье результаты показывают, что модель, построенная в рамках программного комплекса ANSYS, позволяет с достаточной точностью (около 10–15 %) описать реакцию опоры



при смещениях правой точки крепления, что приводит к деформациям системы менее 1 мм и безопасным напряжениям в деталях трубы и креплениях.

Авторы благодарны ведущему инженеру-технологу Г.В. Рыбакову и электромеханику 6-го разряда В.В. Сушкову (сотрудники Петербургского института ядерной физики им. Б.П. Констан-

тинова) за помощь в создании стенда и измерениях. Авторы также выражают благодарность фирме Apel Bellows, безвозмездно предоставившей для исследований образцы своей продукции.

Работа выполнена в рамках контракта с НИЦ Курчатовский институт, договор № 140501204 от 5.05.12; а также по госконтракту № 11.519.11.6030 от 14 марта 2012 г. с Министерством образования и науки РФ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Aamodt, K. The ALICE experiment at the CERN LHC [Text] / K. Aamodt, A. A. Quintana, R. Achenbach, [et al.] for the ALICE Collaboration // *Journal of Instrumentation*. — 2008. — Vol. 3. — P. S08002 (259 p.).
2. Das, D. Performance and first physics results of the ALICE muon spectrometer [Text] / D. Das [for the ALICE Collaboration] // *Nuclear Physics*. — 2011. — Vol. A862–863. — P. 223–230.
3. Alessandro, B. ALICE: Physics performance report [Text]: Vol. II. / B. Alessandro, F. Antinori, J. Belikov [et al.] for the ALICE Collaboration // *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*. — 2006. — Vol. 32. — P. 1295–2040.
4. Abelev, B. Production of muons from heavy flavour decays at forward rapidity in pp and Pb–Pb collisions [Text] / B. Abelev, J. Adam, D. Adamova [et al.] for the ALICE Collaboration // *Physical Re-*

view Letters. — 2012. — Vol. 109. — P. 112301(11 p.)

5. Uras, A. Feasibility study for a muon forward tracker in the ALICE experiment [Электронный ресурс] / A. Uras, L. Massacrier [for the ALICE Collaboration] // International Europhysics Conf. on High Energy Physics (HEP- 2011), Grenoble; France. — 2011. — Available at: arXiv: <http://fr.arXiv.org/abs/1201.0680>

6. Upgrade of the ALICE experiment. Muon forward tracker letter of intent addendum [Text] / ALICE Collaboration // to be printed in CERN Note, ALICE-UG-003, 2013. — 88 p.

7. Андреева, Л.Е. Сильфоны. Расчет и проектирование [Текст]: Под ред. Л.Е. Андреевой. — М.: Машиностроение, 1975. — 230 с.

8. ANSYS simulations portal [Электронный ресурс] / ANSYS Company // <http://www.ansys.com>

REFERENCES

1. Aamodt K., Quintana A.A., Achenbach R. et al. The ALICE experiment at the CERN LHC. *Journal of Instrumentation*, 2008, Vol. 3, p. S08002 (259 p.).
2. Das D. Performance and first physics results of the ALICE muon spectrometer. *Nuclear Physics*, 2011, Vol. A862–863, pp. 223–230.
3. Alessandro B., Antinori F., Belikov J. et al. ALICE: Physics performance report: Vol. II. *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*, 2006, Vol. 32, pp. 1295–2040.
4. Abelev B., Adam J., Adamova D. et al. Production of muons from heavy flavour decays at forward rapidity in pp and Pb–Pb collisions. *Physical*

Review Letters, 2012, Vol. 109, p. 112301(11 p.)

5. Uras A., Massacrier L. Feasibility study for a muon forward tracker in the ALICE experiment. International Europhysics Conf. on High Energy Physics (HEP-2011), Grenoble; France, 2011. Available at: arXiv: <http://fr.arXiv.org/abs/1201.0680>

6. Upgrade of the ALICE experiment. Muon forward tracker letter of intent addendum. ALICE Collaboration to be printed in CERN Note, ALICE-UG-003, 2013, 88 p.

7. Andreeva L.E. Sil'fony. Raschet i proektirovanie. Moscow, Mashinostroenie, 1975, 230 p. (rus)

8. ANSYS simulations portal. ANSYS Company, available at: <http://www.ansys.com>

БЕРДНИКОВ Ярослав Александрович — доктор физико-математических наук, профессор, заведующий кафедрой экспериментальной ядерной физики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
berdnikov@spbstu.ru

БЕРДНИКОВ Александр Ярославич — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры экспериментальной ядерной физики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
alexber@phmf.spbstu.ru

ЕВСЕЕВ Валерий Алексеевич — кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Петербургского института ядерной физики им. Б.П. Константинова.

188300, Ленинградская обл., г. Гатчина, Орлова Роща
evs@pnpi.spb.ru

МИФТАХОВ Наиль Масгутович — ведущий инженер Петербургского института ядерной физики им. Б.П. Константинова.

188300, Ленинградская обл., г. Гатчина, Орлова Роща
nail@pnpi.spb.ru

НИКУЛИН Владимир Николаевич — кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Петербургского института ядерной физики им. Б.П. Константинова.

188300, Ленинградская обл., г. Гатчина, Орлова Роща
vladimir.nikulín@cern.ch

САМСОНОВ Владимир Михайлович — доктор физико-математических наук, профессор кафедры экспериментальной ядерной физики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
samsonov@pnpi.spb.ru

ТАРАСЕНКОВА Ольга Павловна — ведущий инженер-конструктор Петербургского института ядерной физики им. Б.П. Константинова.

188300, Ленинградская обл., г. Гатчина, Орлова Роща
tarassen@pnpi.spb.ru



УДК 621.383.4:620.91

Е.С. Аронова, В.М. Емельянов, М.З. Шварц

**ПРОГНОЗИРОВАНИЕ ЭНЕРГОПРОИЗВОДИТЕЛЬНОСТИ
МНОГОПЕРЕХОДНЫХ ФОТОПРЕОБРАЗОВАТЕЛЕЙ A^3B^5
С ОПТИЧЕСКИМИ КОНЦЕНТРАТОРАМИ В РАЗЛИЧНЫХ
ГЕОГРАФИЧЕСКИХ РАЙОНАХ**

E.S. Aronova, V.M. Emelyanov, M.Z. Shvarts,

Ioffe Physical-Technical Institute of the Russian Academy of Sciences
26 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 194021, Russia

**PREDICTION OF ENERGY PERFORMANCE
OF MULTIJUNCTION A^3B^5 PHOTOCONVERTERS WITH OPTICAL
CONCENTRATORS IN DIFFERENT GEOGRAPHIC REGIONS**

В статье исследована реакция рабочих характеристик многопереходных фотопреобразователей A^3B^5 с оптическими концентраторами на изменение спектрального состава солнечного излучения в различных климатических поясах Земли. Получены оценки энергопроизводительности фотопреобразователей в нескольких географических районах. Показано, что погрешность прогнозирования выработки электроэнергии может составлять до 16 % при отсутствии учета изменения КПД фотопреобразователя при вариации спектрального состава падающего излучения.

СОЛНЕЧНЫЙ ЭЛЕМЕНТ, МНОГОПЕРЕХОДНЫЙ ФОТОПРЕОБРАЗОВАТЕЛЬ, ФОТО-ЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ МОДУЛЬ, ВЫРАБОТКА ЭЛЕКТРОЭНЕРГИИ.

In the paper the simulation of the response of the working parameters of multijunction A^3B^5 photoconverters with optical concentrators on the change in the spectral composition of the solar radiation in different climatic conditions has been performed. Energy production of the photoconverters in several geographical locations was estimated. It was shown that inaccuracy of prediction of the energy production might be up to 16 % high in the case of neglecting photoconverter efficiency changing under the incident light spectral composition variation.

SOLAR CELL, MULTIJUNCTION PHOTOCONVERTER, PHOTOVOLTAIC MODULE, ENERGY PRODUCTION.

При проектировании солнечных фотоэлектрических установок (СФЭУ) решается задача достоверной оценки текущей мощности и годовой выработки электроэнергии СФЭУ при функционировании в заданном географическом районе. Для этого выполняется прогнозирование энергопроизводительности фотоэлектрических модулей (ФЭМ), используемых в установках, в климатических условиях поступления солнечного излучения, соответствующих рассматриваемому пункту эксплуатации.

На сегодняшний день общемировой

практикой является публикация производителями характеристик солнечных элементов (СЭ) и ФЭМ с концентраторами солнечного излучения (СИ) только для стандартных условий испытаний: спектр излучения — AM 1,5D LAOD, энергетическая освещенность — 1000 Вт/м², температура — 25 °С. Здесь обозначение «AM1,5» относится к солнечному свету, прошедшему в атмосфере путь, равный полутора ее толщинам (AM — сокращение от англ. «Air mass» — воздушная масса). Аналогично «AM2» соответствует световому излучению,

прошедшему путь, равный двум толщинам атмосферы, и т. д. Буква «D» обозначает спектр, в котором учитываются только фотоны прямого светового потока (именно они преобразуются в ФЭМ с оптическими концентраторами). Аббревиатура LAOD расшифровывается как Low Aerosol Optical Depth и означает малое содержание взвешенных аэрозолей в атмосфере.

В то же время является очевидным существенное отличие стандартных условий от действительных характеристик солнечного излучения, наблюдаемых в течение года в различных географических районах. Реальный спектр СИ зависит от длины пути, проходимого лучами в атмосфере Земли (величины атмосферной массы АМ), а также от типа атмосферы в различных климатических поясах планеты [1]. Спектральный состав излучения оказывает особенно сильное влияние на эффективность монокристаллических многопереходных (МП) СЭ. Влияние спектрального состава СИ на рассогласование фототоков в АЗВ⁵ МП СЭ, их параметры и величину годовой выработки электроэнергии было исследовано в работах [2–4]. В них было показано, что суммарная годовая выработка электроэнергии

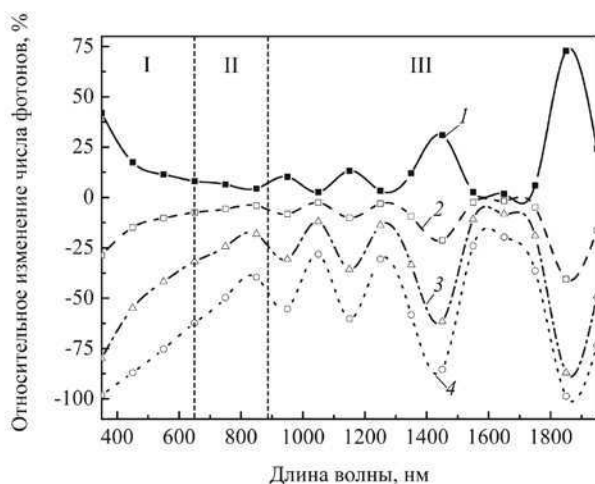


Рис. 1. Изменение числа фотонов в потоке излучения по сравнению со стандартом АМ 1,5 для спектров АМ 1 (1), АМ 2 (2), АМ 4 (3) и АМ 8 (4)
Многопереходный солнечный элемент на структуре GaInP/ Ga(In)As/Ge
Римскими цифрами пронумерованы субэлементы

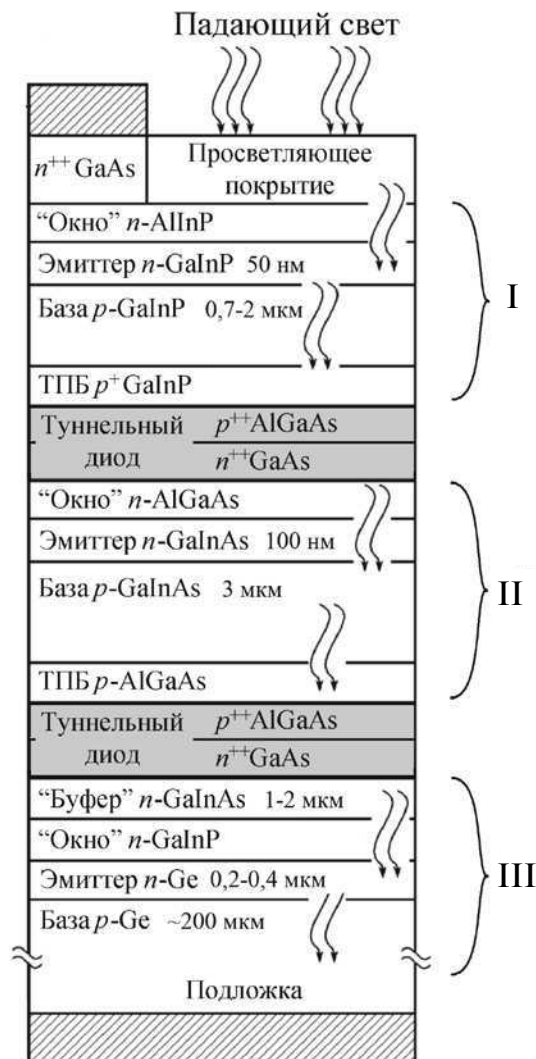


Рис. 2. Структура исследованного монокристаллического многопереходного солнечного элемента (МП СЭ) GaInP/Ga(In)As/Ge
Римскими цифрами пронумерованы субэлементы

фотопреобразователем может оказаться до 3–4 % ниже оценки, полученной без учета реального спектрального состава солнечного излучения на поверхности элемента в процессе эксплуатации.

Таким образом, становится очевидной необходимость корректного учета реальных условий эксплуатации при прогнозировании энергопроизводительности СЭ и ФЭМ, функционирующих в солнечных фотоэлектрических установках. Кроме того, появляется задача оптимизации конструкции МП СЭ с учетом реальных условий их



функционирования; это позволит достичь высоких эксплуатационных характеристик ФЭМ в СФЭУ [5].

Причиной изменения эффективности ФЭМ в зависимости от географической широты места его эксплуатации является вариация состава излучения, приходящего на СЭ. Поглощение и рассеяние солнечного излучения в атмосфере Земли происходит неодинаково для различных длин волн. Зависимости относительного изменения числа фотонов в спектре солнечного излучения для различного числа воздушных масс, по сравнению с числом фотонов при AM1,5D, показаны на рис. 1, где для примера выделены спектральные диапазоны, соответствующие фотонам, поглощаемым в отдельных субэлементах типичного МП СЭ GaInP/Ga(In)As/Ge. Схематичное изображение его структуры приведено на рис. 2. Она включает три субэлемента, имеющих фотоактивные p - n -переходы, соединенные последовательно при помощи туннельных диодов. Каждый из субэлементов включает слои широкозонного окна, эмиттера, базы и тыльного потенциального барьера (ТПБ), в которых поглощается солнечное излучение. Моделирование спектральных составов излучения проводилось с помощью программы SMARTS2 [6].

Видно, что изменение толщины атмосферы, которую необходимо преодолеть солнечному свету, наиболее сильно влияет на количество фотонов в коротковолновом

(длина волны менее 650 нм) и длинноволновом (более 900 нм) диапазонах. Если, например, некоторый МП СЭ GaInP/Ga(In)As/Ge был согласован по фототокам субэлементов GaInP и Ga(In)As при спектре AM1,5D, то при увеличении оптического пути излучения в атмосфере (AM x , $x > 2$) происходит перевод МП СЭ в режим ограничения по фототоку верхним субэлементом. При уменьшении длины оптического пути (AM x , $1,0 < x < 1,5$) ограничение будет наблюдаться по фототоку субэлемента Ga(In)As. Возникающие при токовом рассогласовании потери приводят к снижению КПД фотопреобразователя.

В течение дня солнце находится над горизонтом на разной высоте, и спектральный состав солнечного излучения, поступающего на поверхность фотопреобразователя, меняется в соответствии со значением атмосферной массы в каждый момент времени. Средняя доля времени, в течение которого спектральный состав СИ характеризуется определенным числом атмосферных масс, зависит от широты местности (см. таблицу).

Существенное влияние на спектральный состав СИ на поверхности ФЭМ и СФЭУ оказывает и химический состав атмосферы, определяемый климатическими особенностями поясов Земли. Относительные различия в спектральной плотности энергетической освещенности для разных атмосфер достигают 1,3 % в диапазоне длин волн менее 650 нм, 30 % для длин волн от 650 до

Изменение спектра солнечного излучения в течение года

Число AM (Air Mass)	Доля времени в течение года для широты, %			Интегральная плотность потока излучения, Вт/м ²
	25°	50°	70°	
от 1,0 до 1,5	5,3	0	0	от 845 до 954
от 1,5 до 2,0	18,2	12,6	3,8	от 768 до 862
от 2 до 3	14,1	15,7	16,6	от 648 до 804
от 3 до 4	4,6	10,2	8,9	от 557 до 756
от 4 до 8	5,8	8,2	13	от 337 до 683

Примечания.

1. Число AM = 1,5 соответствует длине пути солнечного излучения, равной полуторной толщине пройденного атмосферного слоя (стандартное условие испытаний).
2. Представлена средняя доля времени, в течение которого спектральный состав излучения характеризуется определенным числом AM.

900 нм и до 150 % для диапазона от 900 до 1900 нм [5]. Это приводит к еще большему усложнению зависимости КПД и среднегодовой выработки электроэнергии ФЭМ на основе МП СЭ от района их применения.

В программном комплексе SMARTS2 при расчетах используются следующие базовые типы атмосфер:

- стандартная (U.S. Standard Atmosphere);
- арктического пояса;
- субарктического пояса;
- умеренного пояса;
- субтропического пояса;
- тропического пояса.

Атмосферы, за исключением стандартной и тропического пояса, имеют свои модификации для летнего и зимнего периодов. Данные типы атмосфер использовались в дальнейших расчетах.

В качестве основы для моделирования ФЭМ был выбран МП СЭ, ранее приобретенный и серийно производимый со структурой GaInP/GaAs/Ge [5], а также оптический концентратор на основе линзы Френеля из полимерного материала [7], изготовленный в ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН. Фотопреобразователи данного типа обладают на сегодняшний день наибольшим КПД [8] и вместе с полимерными линзами Френеля, имеющими низкую себестоимость производства, могут быть использованы для создания коммерческих фотоэлектрических установок.

Исследованный МП СЭ имел квадратную форму с длиной грани 2,428 мм, площадь апертуры составляла 0,03979 см². Форма оптического концентратора – квадратная. Концентратор обеспечивал среднюю кратность концентрирования 400 × в апертуре МП СЭ при оптическом КПД от 85 до 88 %, в зависимости от спектрального диапазона.

Для МП СЭ были измерены спектральная и вольтамперная характеристики. По спектральной характеристике были рассчитаны плотности фототоков субэлементов, с использованием которых была промоделирована вольтамперная характеристика (ВАХ). Моделирование производилось при помощи распределенной трехмерной эквивалентной схемы [9]. Плотности темновых

токов и последовательного сопротивления варьировались для обеспечения согласования с экспериментальными зависимостями. Определенные этим образом параметры использовались в дальнейших вычислениях.

В МП СЭ со структурой GaInP/Ga(In)As/Ge управление перераспределением числа поглощаемых фотонов между субэлементами производится регулированием толщины GaInP субэлемента. Ее влияние на энергопроизводительность в различных географических районах должно было быть учтено. Для этого необходимо было обеспечить моделирование изменения фотоэлектрических характеристик исследованного МП СЭ при вариации толщины субэлемента. С учетом того, что структура МП СЭ, взятого в качестве прототипа, не была достоверно известна, моделирование производилось на базе близкой структуры, разработанной в ФТИ им. Иоффе РАН [9] (см. рис. 2). Параметры структуры варьировались для обеспечения наилучшего совпадения спектральных характеристик, рассчитываемых методом [10], с экспериментально измеренными.

Для промоделированной структуры удалось добиться практически полного совпадения расчетной спектральной характеристики с измеренной для серийного МП СЭ, при суммарной толщине эмиттера и базы субэлемента GaInP, равной 0,9 мкм. Диффузионные длины ННЗ соответствовали работе [5]. Расчетная характеристика обеспечивала несколько больший фототок субэлемента Ga(In)As, что было обусловлено существенным отражением света в области фоточувствительности данного субэлемента в серийном МП СЭ. Поскольку это явление не является характерным для всех МП СЭ со структурой GaInP/Ga(In)As/Ge, данная особенность элемента не была повторена.

Максимальный КПД серийного МП СЭ достигался при кратности концентрирования 1000× (спектр AM 1,5D LAOD) и составлял 38,2 %. Максимальный КПД промоделированного МП СЭ достигался при тех же условиях и составлял 39,1 %. При кратности концентрирования 400× (AM 1,5D LAOD) КПД серийного МП СЭ составлял 37,8 %, а КПД ФЭМ на его осно-

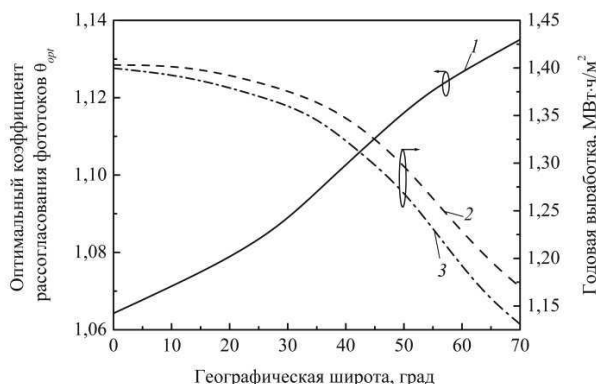


Рис. 3. Распределение по географическим широтам оптимального значения коэффициента рассогласования фототоков субэлементов GaInP и Ga(In)As в МП СЭ GaInP/ Ga(In)As/ Ge (1), а также величины суммарной годовой выработки ФЭМ на основе полимерной линзы Френеля и исследованного МП при $\theta = \theta_{\text{opt}}$ (2) и $\theta = 1$ (3)

ве с линзовым концентратором – 32,1 %. Для промоделированного СЭ соответствующие значения составили 38,7 и 32,3 %, соответственно.

Представленные в таблице данные показывают, что даже для тропических регионов большую часть времени года оптический путь солнечного излучения в атмосфере Земли превышает значение AM1,5. Для средних широт и приполярных областей основная доля излучения преодолевает удвоенную или утроенную толщину атмосферы. Это приводит к тому, что МП СЭ работает в условиях согласования по фототокку между субэлементами (спектр AM1,5D) и обеспечивает максимальную выработку электроэнергии лишь в короткие временные отрезки. Большая интегральная плотность потока излучения при малых числах атмосферной массы снижает влияние этого эффекта, но не подавляет его. Поэтому суммарная выработка электроэнергии СФЭУ с такими МП СЭ уступает теоретически достижимой.

В работе [5] были исследованы вопросы оптимизации МП СЭ GaInP/Ga(In)As/Ge для увеличения суммарной годовой выработки СФЭУ. В качестве критерия адаптации этого МП СЭ под географическую широту установки СФЭУ было пред-

ложено использовать отношение фототоков субэлементов GaInP и Ga(In)As при облучении их стандартным спектром AM1,5D LAOD:

$$\theta = J_{ph}^{\text{GaInP}} / J_{ph}^{\text{Ga(In)As}}. \quad (1)$$

Рассчитанная зависимость коэффициента θ , обеспечивающего максимальный КПД, в зависимости от широты размещения СФЭУ представлена на рис. 3. Там же приведены зависимости годовой выработки электроэнергии ФЭМ с концентратором на основе линзы Френеля и с МП СЭ GaInP/Ga(In)As/Ge. Параметры атмосферы при расчетах выбирались из списка стандартных атмосфер для SMARTS2 в зависимости от широты. Видно, что по мере удаления от экватора эффект от оптимизации начинает давать все больший вклад в общую энергопроизводительность ФЭМ и СФЭУ.

В реальных условиях эксплуатации выработка СФЭУ может оказаться более низкой. При этом вклады от оптимизации структуры в энергопроизводительность различаются. Причинами этого могут быть факторы, характерные для конкретной точки размещения СФЭУ. К ним относятся:

- влажность и запыленность атмосферы;
- изменение метеоусловий в течение года, количество ясных дней;
- изменение метеоусловий в течение дня.

На рис. 4 приведены результаты расчетов суммарной годовой выработки для пяти характерных точек размещения СФЭУ. При этом отображены величины выработок при использовании в ФЭМ как идеального, так и реального концентраторов излучения. Видно, что общая динамика различий между оптимизированной и неоптимизированной структурами совпадает с полученной в реальных условиях.

Также на рис. 4 изображены величины выработок, рассчитанные в предположении, что КПД МП СЭ является постоянным и не зависит от широты. Видно, что такой подход, успешно применяемый при оценке выработки СФЭУ на основе однопереходных СЭ, приводит к значительным погрешностям в данном случае.

Относительную погрешность прогнозирования годовой выработки ФЭМ можно

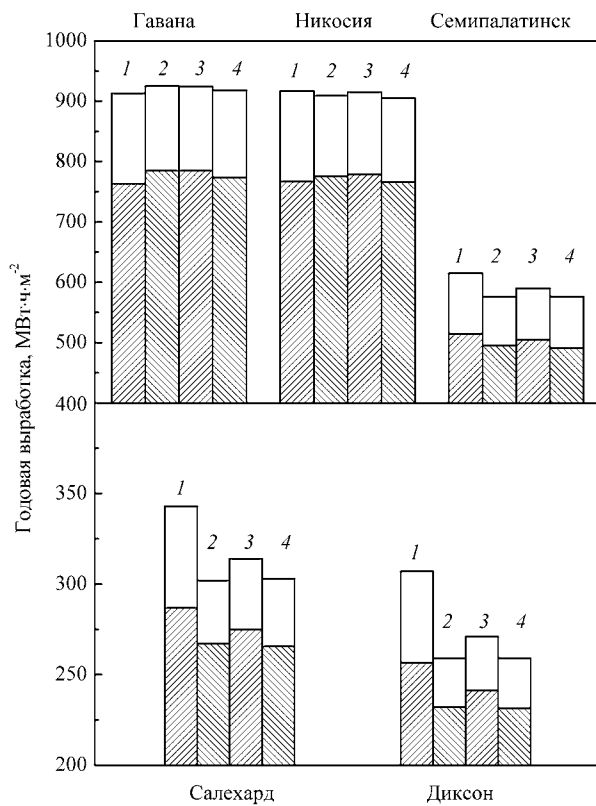


Рис. 4. Сравнительная оценка энергопроизводительности ФЭМ на основе исследованных МП СЭ для различных регионов и условий: 1 – для постоянного КПД = 38,7 % (вне зависимости от региона); 2, 3 – ФЭМ с МП СЭ при $\theta = 1$ и θ_{opt} соответственно; 4 – ФЭМ с серийным МП СЭ; полые столбцы – оценки для идеального концентратора с кратностью 400×, заштрихованные – для исследованного, на основе линзы Френеля

представить в следующей форме:

$$\xi = [(Q_{\text{eff.const}} - Q)/Q_{\text{eff.const}}] 100\%, \quad (2)$$

где Q – величина фактической выработки электроэнергии, а $Q_{\text{eff.const}}$ – величина выработки при отсутствии учета изменения КПД МП СЭ.

Расчетные значения погрешностей для исследованных районов установки представлены на рис. 5. Для ФЭМ на основе МП СЭ $\theta = 1$ и $\theta = \theta_{\text{opt}}$, погрешность оценивалась в сравнении ФЭМ с СЭ, имеющим КПД = 38,7 %. Для ФЭМ на основе исследованного серийного МП СЭ оценка производилась в сравнении с ФЭМ с СЭ, имеющим КПД = 37,8 %, которое данный

МП СЭ имеет при облучении светом с кратностью 400 ×.

Из рис. 5 несложно видеть, что погрешность увеличивается по мере удаления от экватора. При этом, если для Гаваны и Никосии реальная величина выработки будет превышать прогнозируемую, то эффективность применения СФЭУ в приполярных областях окажется заметно ниже ожидаемой. Погрешности для структур, оптимизированных по соотношению фототоков субэлементов GaInP и Ga(In)As, оказываются меньше, чем для согласованных для спектра AM1,5D, однако все равно достаточно высоки. Различие между значениями погрешностей для идеального и реального концентраторов объясняется спектральной зависимостью оптических потерь в линзовом концентраторе, которые максимальны в спектральных диапазонах фоточувствительности субэлементов GaInP и Ge.

Анализ данных, представленных на рис. 4 и 5, показывает, что суммарная годовая выработка СФЭУ существенно зависит от географических координат пункта эксплуатации.

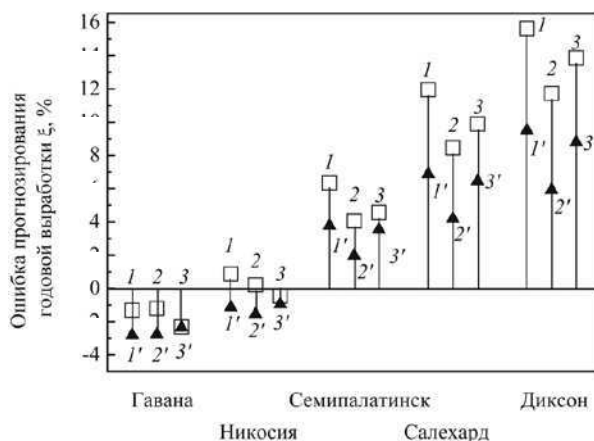


Рис. 5. Сравнение погрешностей оценок энергопроизводительности ФЭМ, сделанных без учета зависимости КПД СЭ от спектра излучения для различных регионов и условий: ФЭМ с МП СЭ при $\theta = 1$ (1, 1') и $\theta = \theta_{\text{opt}}$ (2, 2'); ФЭМ с серийным МП СЭ (3, 3').

Символы с номерами 1 – 3 соответствуют использованию в ФЭМ идеального концентратора с кратностью 400×, с номерами 1' – 3' – использованию линзы Френеля



При прогнозировании энергопроизводительности СФЭУ на основе МП СЭ необходимо осуществлять расчеты с учетом изменения КПД последних в разных условиях облучения. Пренебрежение изменением КПД СФЭУ на основе МП СЭ GaInP/Ga(In)As/Ge в зависимости от инсоляционных условий пункта эксплуатации приводит к занижению значений ожидаемой выработки электроэнергии до 2 % для экваториальных областей и их завышению на величину от 6 до 16 % при инсталляциях в средних и приполярных широтах. Использование оптимизированных (по соотношению фототоков GaInP и Ga(In)As

субэлементов) МП СЭ GaInP/Ga(In)As/Ge для различных географических широт является предпочтительным, так как позволяет получить ФЭМ и СФЭУ на их основе с энергетическими характеристиками, более подходящими для данного места эксплуатации. Кроме того, погрешность прогнозных оценок энергопроизводительности СФЭУ на основе оптимизированных МП СЭ оказывается ниже на 2–4 %, чем для оценок, не учитывающих непостоянство КПД.

Работа выполнена при поддержке гранта президента Российской Федерации для молодых ученых МК-2041.2012.8 и гранта РФФИ № 12-08-00354.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Елистратов, В.В. Солнечные энергоустановки. Оценка поступления солнечного излучения [Текст]: Учебное пособие, под ред. В.В. Елистратова / В.В. Елистратов, Е.С. Аронова. — СПб.: Изд-во Политехн. ун-та, 2012. — 164 с.
2. Faine, P. The influence of spectral solar irradiance variations on the performance of selected single-junction and multijunction solar cells [Текст] / P. Faine, S.R. Kurtz, C. Riordan, J.M. Olson // *Solar Cells*. — 1991. — Vol. 31. — № 3. — P. 259–278.
3. Araki, K. Influences of spectrum change to 3-junction concentrator cells [Текст] / K. Araki, M. Yamaguchi // *Solar Energy Materials and Solar Cells*. — 2003. — Vol. 75. — P. 707–714.
4. Peharz, G. A simple method for quantifying spectral impacts on multi-junction solar cells [Текст] / G. Peharz, G. Siefer, A.W. Bett // *Solar Energy*. — 2009. — Vol. 83. — P. 1588–1598.
5. Аронова Е.С. Анализ энергопроизводительности концентраторных фотоэлектрических модулей на основе солнечных элементов со структурой GaInP/Ga(In)As/Ge в различных географических районах [Текст] / Е.С. Аронова, В.М. Емельянов, М.З. Шварц // *Гелиотехника*. — 2012. — № 3. — С. 66–74.
6. Myers, D.R. Proposed reference spectral ir-

radiance standards to improve concentrating photovoltaic system design and performance evaluation [Текст] / D.R. Myers, K. Emery // *Proc. 31st IEEE PVSC on CD*. — 2002. — P. 923–926.

7. Andreev, V.M. Weakening of the chromatic aberration negative effect on the performance of concentrator multi-junction solar cells [Текст] / V.M. Andreev, V.A. Grilikhes, A.A. Soluyanov [и др.] // *Proc. 22nd EPSEC on CD*. — 2007. — P. 126–132.

8. Green, M.A. Solar cell efficiency tables (version 41) [Текст] / M.A. Green, K. Emery, Y. Hishikawa [и др.] // *Progress in Photovoltaics: Research and Applications*. — 2012. — Vol. 21. — № 1. — P. 1–11.

9. Емельянов, В.М. Оптимизация концентраторных солнечных элементов на основе структур GaInP/Ga(In)As/Ge [Текст] / В.М. Емельянов, Н.А. Калюжный, М.А. Минтаиров [и др.] // *Научно-технические ведомости СПбГПУ: Физико-математические науки*. — 2011. — № 1 (116). — С. 11–18.

10. Емельянов, В.М. Внешний квантовый выход фотоответа каскадных солнечных элементов [Текст] / В.М. Емельянов, С.А. Минтаиров, Н.А. Калюжный, В.М. Лантратов // *Научно-технические ведомости СПбГПУ: Физико-математические науки*. — 2009. — № 2 (77). — С.14–27.

REFERENCES

1. Elistratov V.V., Aronova E.S. Solnechnye energoustanovki. Ocenka postupleniya solnechnogo izlucheniya: uchebnoe posobie, pod red. V.V. Elistratova. St. Petersburg, Izdatel'stvo Politekhnikeskogo universiteta, 2012, 164 p. (rus)
2. Faine P., Kurtz S.R., Riordan C., Olson J.M. The influence of spectral solar irradiance

variations on the performance of selected single-junction and multijunction solar cells. *Solar Cells*, 1991, Vol. 31 (3), pp. 259–278.

3. Araki K., Yamaguchi M. Influences of spectrum change to 3-junction concentrator cells. *Sol. En. Mat. & Solar Cells*, 2003, Vol. 75, pp. 707–714.

4. Peharz G., Siefer G., Bett A.W. A simple method for quantifying spectral impacts on multi-junction solar cells. *Solar Energy*, 2009, Vol. 83, pp. 1588–1598.
5. Shwarz M.Z., Aronova E.S., Emelianov V.M. Analysis of power efficiency of concentrator photovoltaic modules based on solar cells with GaInP/Ga(In)As/Ge structure in various geographic regions. *Applied Solar Energy*, 2012, Vol. 48 (3), pp.203–212.
6. Myers D.R., Emery K. Proposed reference spectral irradiance standards to improve concentrating photovoltaic system design and performance evaluation. Proc. 31st IEEE PVSC on CD, 2002, pp. 923 – 926.
7. Andreev V.M., Grilikhes V.A., Soluyanov A.A., Timoshina N.H., Vlasova E.V. Shvarts M.Z. Weakening of the chromatic aberration negative effect on the performance of concentrator multi-junction solar cells. Proc. 22nd EPSEC on CD, 2007, pp. 126–132.
8. Green M.A., Emery K., Hishikawa Y., Warta W., Dunlop E.D. Solar cell efficiency tables. *Progress in Photovoltaics: Research and Applications*, 2012, Vol. 21 (1), pp. 1–11.
9. Emelyanov V.M., Kalyuzhniy N.A., Mintairov M.A., Mintairov S.A., Shvarts M.Z., Lantratov V.M. Optimization of the concentrator three-junctional solar cells. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2011, No. 1(116), pp. 11–18. (rus)
10. Emelyanov V.M., Mintairov S.A., Kalyuzhniy N.A., Lantratov V.M. The external quantum yield of photoresponce of tandem solar cells. *St.-Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2009, No. 2(77), pp. 14–27. (rus).

АРОНОВА Екатерина Сергеевна — кандидат технических наук, научный сотрудник лаборатории фотоэлектрических преобразователей Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

194021, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26
 earonova@mail.ioffe.ru

ЕМЕЛЬЯНОВ Виктор Михайлович — кандидат физико-математических наук, научный сотрудник лаборатории фотоэлектрических преобразователей Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

194021, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26
 resso2003@bk.ru

ШВАРЦ Максим Зиновьевич — кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник лаборатории фотоэлектрических преобразователей Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

194021, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26
 shvarts@scell.ioffe.ru



УДК 533.9

*М.В. Мишин, С.Е. Александров***РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОТЕНЦИАЛА В РЕАКТОРЕ
С УДАЛЕННОЙ ПЛАЗМОЙ АТМОСФЕРНОГО ДАВЛЕНИЯ***M.V. Mishin, S.E. Alexandrov*St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia**ELECTRICAL POTENTIAL DISTRIBUTION ALONG THE REACTOR
WITH ATMOSPHERIC PRESSURE REMOTE PLASMA**

Разработана оригинальная конструкция электрического зонда и методика, позволяющая производить измерения параметров ионного потока в реакторе с источником удаленной плазмы, стимулированной высокочастотным емкостным разрядом (13,56 МГц) в гелии при атмосферном давлении. Приведены экспериментальные данные по распределению концентрации ионов и потенциала пространства вдоль оси реактора, вне разрядного промежутка.

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ПОТЕНЦИАЛ, УДАЛЕННАЯ ПЛАЗМА, ВЧ-РАЗРЯД, АТМОСФЕРНОЕ ДАВЛЕНИЕ, ЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЗОНД, ИОННЫЙ ПОТОК.

The original design of electrical probe and the investigation techniques for ion flux characteristics have been developed. The measurements were carried out in the reactor equipped remote low temperature plasma generated by radio-frequency (RF) helium discharge (13.56 MHz) at atmospheric pressure. The experimental data on distributions of ion concentrations and electrical potential along the reactor, outside of the discharge gap were given.

ELECTRICAL POTENTIAL, REMOTE PLASMA, RF-DISCHARGE, ATMOSPHERIC PRESSURE, ELECTRICAL PROBE, ION FLUX.

Среди многообразия методов синтеза различных нанообъектов особый интерес представляют процессы низкотемпературного плазмохимического осаждения из газовой фазы при атмосферном давлении [1–5]. Использование атмосферного давления обладает преимуществом, по сравнению с работой в условиях вакуума, поскольку позволяет применять более высокие значения парциальных давлений реагентов, а это приводит к значительному увеличению скоростей химических реакций. Благодаря такому увеличению плазмохимические процессы, основанные на гомогенном взаимодействии газообразных высокореакционных частиц (радикалы, атомы, ионы), происходящем при атмосферном давлении, весьма перспективны в плане их использования для получения различных функцио-

нальных материалов в виде наночастиц.

Предполагается, что в процессах формирования наночастиц, их переноса из области синтеза на подложку и распределения осаждаемого материала на ее поверхности важную роль играет пространственная геометрия электрического потенциала [6, 7] в той области реактора, где потоком газа осуществляется транспорт наночастиц из разрядного промежутка.

Настоящая работа посвящена апробации методики, позволяющей измерять концентрацию заряженных частиц и исследовать распределение электрического потенциала в пространстве между разрядным промежутком и подложкой в реакторе с удаленной плазмой высокочастотного (ВЧ) разряда, которая создается в атмосфере гелия.

Методика измерений

Высокочастотный (ВЧ) разряд инициировался и поддерживался в атмосфере гелия в емкостном зазоре, образованном двумя плоскопараллельными сетчатыми электродами из нержавеющей стали. Диаметр электродов — 24 мм, а расстояние между ними составляло 2 мм. К одному из электродов подводилась ВЧ мощность на рабочей частоте 13,56 МГц, а второй электрод был заземлен. Для согласования с нагрузкой использовался вариометр, позволявший компенсировать реактивную составляющую полного тока в ВЧ тракте. Ток разряда измерялся с помощью токового трансформатора, напряжение на разрядном промежутке — с помощью емкостного делителя. Мощность, поглощаемая в плазме, поддерживалась во всех измерениях постоянной и составляла 15 Вт. В качестве плазмообразующего газа использовался гелий марки «А» (ГОСТ ТУ0271 135 31323949 2005), расход

которого составлял 350 мл/мин. Перед измерениями осуществлялась предварительная продувка системы гелием в течение 15 мин.

Для измерения электрического тока, переносимого ионами из разрядного промежутка, использовался специальный выносной зонд, располагающийся по оси прибора (рис. 1), представляющий собой плоский цилиндр с площадью поверхности $1,2 \text{ см}^2$. Он помещался в полусферический экран, выполненный из сетки из нержавеющей стали с ячейкой $0,7 \times 0,7 \text{ мм}$ (прозрачность сетки — 99 %). Радиус полусферы составлял 7 мм, объем — около $1,5 \text{ см}^3$. Расстояние от нижней сетки разрядного промежутка до зонда варьировалась в пределах от 5 до 100 мм.

Схема измерений с выносным зондом представлена на рис. 1, б. Зонд выдавал сигнал пилообразной формы с амплитудой U_1 до $\pm 50 \text{ В}$ и частотой 10 Гц. Потенциал

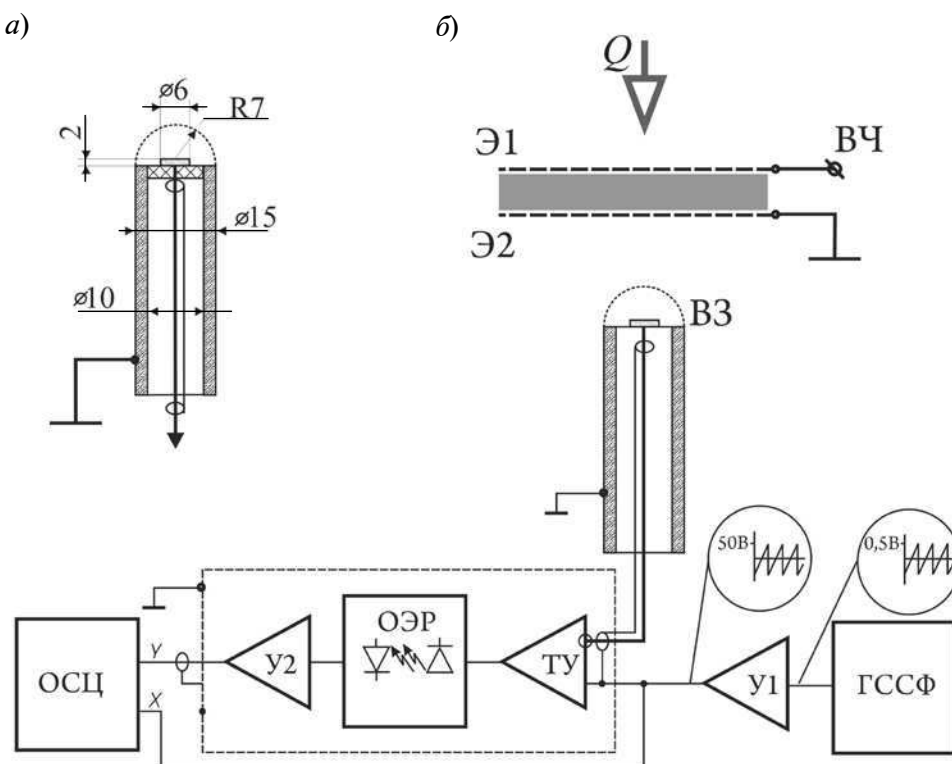


Рис. 1. Конструкция выносного зонда (а) и схема измерения электрического тока с его помощью (б)
Условные обозначения: Э1, Э2 — плоскопараллельные электроды; Q — направление потока газа (гелий); ВЗ — выносной зонд; ТУ — трансимпедансный усилитель; ОЭР — оптоэлектронная развязка; У1, У2 — усилители; ГССФ — генератор сигналов специальной формы; ОСЦ — осциллограф

пилообразной формы формировался с помощью генератора сигналов специальной формы ГССФ и усилителя У1. Ток зонда поступал на вход трансимпедансного усилителя ТУ (его коэффициент преобразования (усиления) составлял 1 В/нА). Нулевой уровень усилителя мог смещаться относительно «земли» на измеряемый потенциал U_{ext} . Таким образом, потенциал зонда и нулевой уровень усилителя могли быть установлены в пределах ± 50 В относительно «земли». Сигнал U_2 с усилителя У1 поступал на один из каналов осциллографа ОСЦ через гальваническую оптоэлектронную развязку ОЭР и усилитель У2 и измерялся относительно «земли». На второй канал осциллографа подавался потенциал смещения U_{ext} . Таким образом, осциллограф записывал вольтамперную характеристику (ВАХ) зондируемой области, регистрируемую прибором с частотой, определяемой генератором сигналов. Это позволяло в ходе одного эксперимента получать сразу несколько зондовых характеристик, что давало возможность судить о влиянии случайной погрешности.

Результаты и их обсуждение

Вольтамперные характеристики пространства дрейфа были получены с помощью выносного зонда при различных расстояниях от разрядного промежутка. ВАХ для любых расстояний d характеризуются тремя ярко выраженными областями (рис. 2):

двумя прямолинейными частями в области положительных и отрицательных потенциалов зонда $|U_{ext}| \geq 10 - 20$ В;

s -образной частью характеристики в диапазоне $10 - 20 \text{ В} \geq U_{ext} \geq -(10 - 20) \text{ В}$.

Приведем анализ полученных данных в предположении, что положительный ток был обусловлен ионами гелия He^+ , а отрицательный — ионами кислорода O_2^- , образующимися в результате присоединения низкоэнергетичных электронов к молекулам примесного кислорода [8]. Предварительной откачки реактора не проводилось, что могло приводить к сохранению в реакторе газов, содержащихся в атмосферном воздухе. Кроме того, отрицательно заряженный кислород мог появляться в результате ионизации примесей с концентрацией кис-

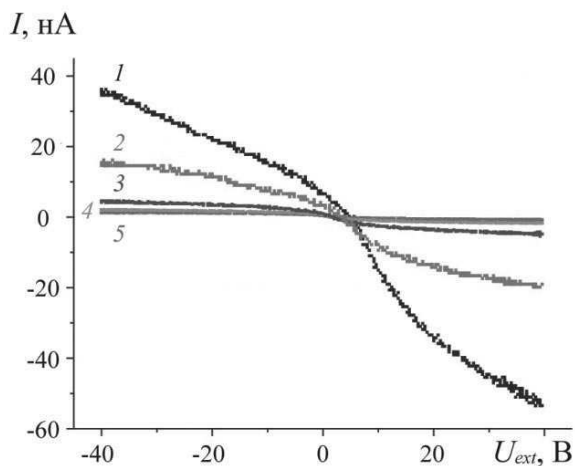


Рис. 2. Вольтамперные характеристики пространства дрейфа, полученные с помощью выносного зонда на разных расстояниях d от нижней сетки разрядного промежутка; значения d , см: 1 (1), 2 (2), 4 (3), 6 (4), 8 (5)

лорода на уровне 0,0001%, воды — 0,0005%; данные концентрации характерны для газов, соответствующих по чистоте марке «А».

Рассмотрим баланс токов, поступающих на выносной зонд. Суммарный ток зонда описывается следующим уравнением:

$$i = s(j_+ + j_-), \quad (1)$$

где s — площадь поверхности зонда; j_+ , j_- — плотности токов положительных и отрицательных ионов, поступающих на зонд.

Поток частиц на зонд складывается из трех основных составляющих:

$$j_{\pm} = j_{dr\pm} + j_{diff\pm} + j_{fl\pm}, \quad (2)$$

где $j_{dr\pm}$ — плотность тока, обусловленная дрейфом ионов в электрическом поле между зондом и полусферическим экраном (находящимся под «земляным» потенциалом); $j_{diff\pm}$ — плотность тока, обусловленная диффузией разноименных ионов; $j_{fl\pm}$ — плотность тока, связанная с переносом зарядов потоком газа.

«Дрейфовая» составляющая плотности зондового тока определяется выражением:

$$j_{dr} = \frac{Vne}{st}, \quad (3)$$

где V — объем, ограниченный полусферическим экраном зонда; n — концентрация

положительных или отрицательных ионов в области расположения зонда; e – заряд частиц; t – время, за которое ион проходит от экрана до зонда.

Время t определяется подвижностью ионов и напряженностью поля:

$$t = \frac{r_{scr}}{\mu E}, \quad (4)$$

где μ – подвижность положительных или отрицательных ионов; r_{scr} – радиус экрана; E – напряженность электрического поля.

Напряженность поля в области зонда примерно равна:

$$E \approx \frac{U_{ext}}{r_{scr}}. \quad (5)$$

Таким образом, выражение для «дрейфовой» составляющей зондового тока будет выглядеть следующим образом:

$$j_{dr} = \frac{2\pi}{3} \cdot \frac{e\mu r_{scr}^2}{s} \cdot n U_{ext}. \quad (6)$$

Рассмотрим часть плотности тока, обусловленную диффузией разноименных ионов. В предположении малой концентрации носителей заряда можно пренебречь амбиполярной диффузией, и тогда выражение для «диффузионной» составляющей можно записать следующим образом:

$$j_{diff} = eD \frac{dn}{dx}. \quad (7)$$

Если принять, что коэффициент диффузии D следует выражению

$$D = \frac{1}{3} e\bar{v}\lambda, \quad (8)$$

где $\bar{v}$ – средняя тепловая скорость, λ – длина свободного пробега, то получаем:

$$j_{diff} = \frac{1}{3} e\lambda \sqrt{\frac{3kT}{m}} \cdot \frac{dn}{dx}. \quad (9)$$

Составляющая плотности тока, определяемая переносом частиц потоком газа, может быть описана следующим образом:

$$j_{fl} = env_{fl}; \quad (10)$$

скорость потока v_{fl} в рассматриваемом случае определяется выражением:

$$v_{fl} = \frac{Q}{S_r}, \quad (11)$$

где Q – объемный расход газа, S_r – площадь сечения реактора.

Тогда получим:

$$j_{fl} = en \frac{Q}{S_r}. \quad (12)$$

Таким образом, плотность потока заряженных частиц на зонд будет описываться следующим выражением:

$$(j_+ + j_-) = \pm \frac{2\pi e\mu_{\pm} r_{scr}^2 n_{\pm}}{3s} \cdot U_{ext} + \frac{1}{3} e\lambda_{\pm} \sqrt{\frac{3kT}{m_{\pm}}} \cdot \frac{dn_{\pm}}{dx} + en_{\pm} \frac{Q}{S_r}. \quad (13)$$

Соответственно получим выражение для суммарного зондового тока:

$$i = s(j_+ + j_-) = \pm \frac{2\pi e\mu_{\pm} r_{scr}^2 n_{\pm}}{3} U_{ext} + \frac{1}{3} e\lambda_{\pm} s \sqrt{\frac{3kT}{m_{\pm}}} \cdot \frac{dn_{\pm}}{dx} + esn_{\pm} \frac{Q}{S_r}. \quad (14)$$

Сравним вклады диффузионной и дрейфовой составляющих тока для положительной ветви ВАХ:

$$\frac{i_{dr}}{i_{diff}} = \frac{\frac{2}{3} \pi e\mu r_{scr}^2 n_+ U_{ext}}{\frac{1}{3} e\lambda_+ s \sqrt{\frac{3kT}{m_+}} \cdot \frac{dn_+}{dx}} \approx \frac{2\pi\mu r_{scr}^2 n_+ U_{ext}}{\lambda_+ s \sqrt{\frac{3kT}{m_+}} \cdot \frac{n_+}{r_{scr}}} = \frac{2\pi\mu r_{scr}^3 U_{ext}}{\lambda_+ s \sqrt{\frac{3kT}{m_+}}}. \quad (15)$$

В первом приближении Чепмена – Энскога можно получить выражение для подвижности ионов в собственном газе с учетом эффекта перезарядки [9]:

$$\mu_+ = \frac{3\sqrt{\pi}e}{16\lambda_+ \sqrt{2kTm}}, \quad (16)$$

где m – масса иона или атома.

С учетом соотношения (15) получаем:

$$\frac{i_{dr}}{i_{diff}} = \frac{3\pi^{\frac{3}{2}}}{8\sqrt{6}} \cdot \frac{er_{scr}^3 U_{ext}}{skT}. \quad (17)$$

Подставляем в данное выражение геометрические параметры выносного зонда и считаем температуру газа близкой к 300 К; тогда получаем:

$$\frac{i_{dr}}{i_{diff}} \approx 0,4 U_{ext}. \quad (18)$$

Таким образом, при потенциале зонда

$U_{ext} > 25$ В диффузионная составляющая тока становится много меньше дрейфовой:

$$i_{diff} \ll i_{dr}.$$

Оценим вклад составляющей тока, определяемой потоком для положительной ветви ВАХ:

$$\frac{i_{dr}}{i_{fl}} = \frac{\frac{2}{3} \pi e \mu_{scr}^2 n_+ U_{ext}}{e s n_+ \frac{Q}{S_r}} = \frac{2 \pi \mu_{scr}^2 S_r U_{ext}}{3 s Q}. \quad (19)$$

Это отношение при используемом расходе газа Q , равном 350 мл/мин, и внутреннем диаметре реактора 3 см составляет:

$$\frac{i_{dr}}{i_{fl}} \approx 1,5 U_{ext}. \quad (20)$$

На основании этих результатов можно утверждать, что в областях ВАХ, характеризующихся линейной зависимостью тока от напряжения, ток определяется преимущественно дрейфовой составляющей:

$$i \approx i_{dr} = \pm \frac{2 \pi e \mu_{scr}^2 n_{\pm} U_{ext}}{3}. \quad (21)$$

Для гелия при комнатной температуре сечение резонансной перезарядки и длина пробега равны, соответственно:

$$\sigma_{res} \approx 4 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2, \lambda = 9,25 \cdot 10^{-6} \text{ см}. \quad (22)$$

С помощью выражения (16) и значений (22) получим подвижность ионов гелия в гелии:

$$\mu_{He^+ - He} = 5,7 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с}). \quad (23)$$

Для оценки подвижности ионов кислорода O_2^- используем выражение с чисто поляризационным сечением.

В том случае, когда резонансная перезарядка отсутствует [10], справедливо выражение:

$$\mu_i = \frac{36 \sqrt{1 + m / m_i}}{\sqrt{(\alpha / a_0^3) A p}} \text{ (см}^2/(\text{В} \cdot \text{с))}, \quad (24)$$

где A — молярная масса газа; p , атм — давление газа; m/m_i — отношение масс атома и иона; α/a_0 , отн. ед. — поляризуемость молекул в основном состоянии α , отнесенная к борковскому радиусу a_0 .

Тогда выражение для оценки подвижности ионов кислорода O_2^- в атмосфере гелия

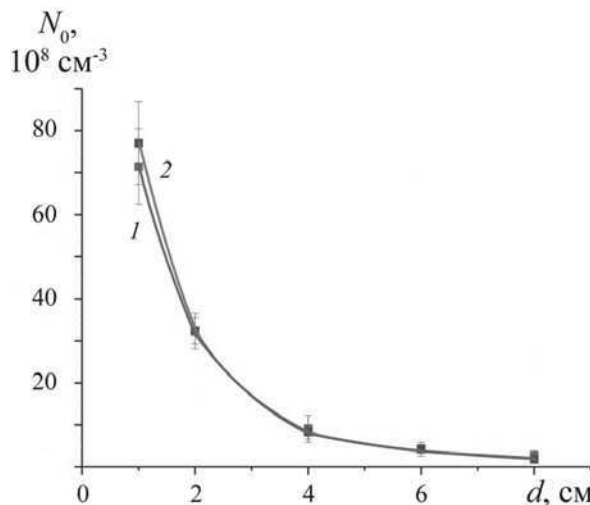


Рис. 3. Распределения концентраций положительных (1) и отрицательных (2) ионов вдоль оси экспериментального прибора в области вне разрядного промежутка

будет выглядеть следующим образом:

$$\mu_{O_2^- - He} = 5,86 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с}). \quad (25)$$

Воспользовавшись выражениями (21)–(25), находим распределение концентрации положительных и отрицательных ионов вдоль оси экспериментального реактора в области вне разрядного промежутка (рис. 3).

В первом приближении можно предположить, что выносной зонд, закрытый экраном, который находится под нулевым

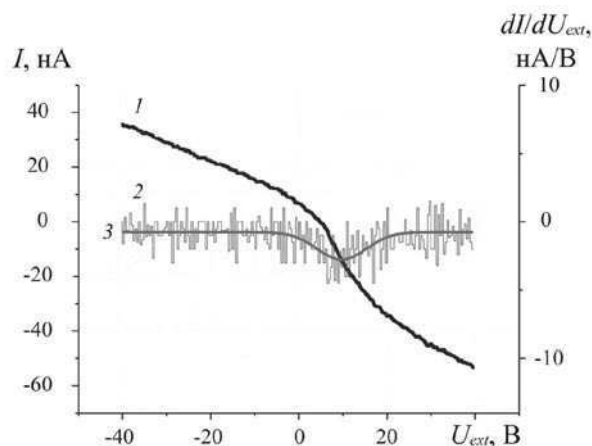


Рис. 4. Экспериментальные зависимости от потенциала зонда для ионного тока I (1) и его производной dI/dU_{ext} (2) с аппроксимацией функцией Гаусса (3)

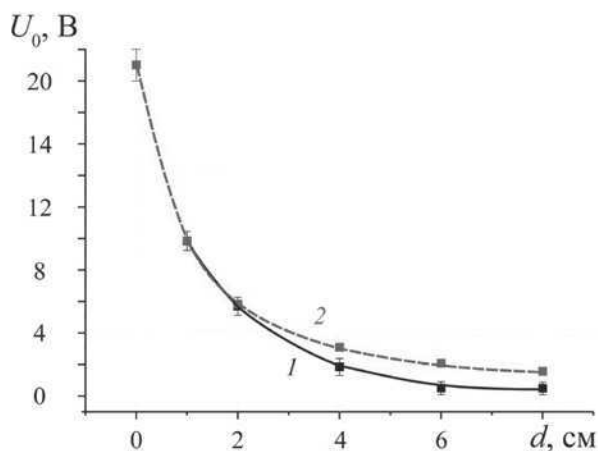


Рис. 5. Экспериментальная зависимость потенциала зондируемого пространства (1) от расстояния между зондом и разрядным промежутком, а также ее аппроксимация (2) функцией по формуле (26)

потенциалом, не вносит возмущения в распределение потенциала в пространстве. Смещение положения максимума производной от величины ионного тока по напряжению относительно нуля, составляющее несколько вольт, соответствует потенциалу пространства в области зонда с точностью порядка $kT_i/e \sim 10^{-2}$ В (рис. 4).

График зависимости потенциала пространства от расстояния до разрядного промежутка приведен на рис. 5 (кривая 1).

Предположим, что в плоскости, расположенной на расстоянии h от разрядного промежутка, положительный заряд сгруппирован в бесконечно тонком цилиндре с радиусом R , равным радиусу электрода. Тогда распределение потенциала по оси прибора будет описываться следующим уравнением:

$$U = C \int_0^R \frac{rdr}{(x^2 + r^2)^{\frac{1}{2}}} = C \left[(x^2 + R^2)^{\frac{1}{2}} - x \right], \quad (26)$$

где C — константа.

Кривая распределения потенциала, соответствующая приведенному выражению, представлена на рис. 5 (кривая 2). Расхождение между аппроксимирующей и экспериментальной кривыми в области больших значений d можно объяснить тем, что не учитывалось радиальное распределение зарядов, а также ряд других факторов, например таких, как диффузия, взаимодействие поля пространственного заряда с потоком ионов, наличие зеркального изображения зарядов на электроде и некоторых прочих.

Таким образом, разработана оригинальная конструкция электрического зонда, позволяющая производить измерения параметров ионного потока в реакторе с источником удаленной плазмы, стимулированной высокочастотным емкостным разрядом в гелии при атмосферном давлении. Анализ вольтамперных характеристик, регистрируемых с помощью зонда, выявил в пространстве реактора, но вне области плазмы наличие положительных и отрицательных ионов с максимальной концентрацией порядка $10^8 - 10^9$ см $^{-3}$. Показано, что газовый поток, содержащий ионы, движется в ниспадающем положительном потенциале с максимумом вблизи +20 В. Измерены пространственные распределения концентрации ионов и электрического потенциала вдоль оси реактора вне разрядного промежутка.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках реализации ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2013 годы (14.B37.21.0810).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Alexandrov, S. Atmospheric pressure plasma enhanced CVD of Fe nanoparticles [Текст] / S. Alexandrov, I. Kretusheva, M. Mishin // ECS Transactions. —2009. —Vol. 25. —P. 943–951.
2. Chen, C. Continuous generation of TiO $_2$ nanoparticles by an atmospheric pressure plasma enhanced process [Текст] / C. Chen., H. Bai, H.M. Chein // Aerosol Science and Technology. —2007. —Vol. 41. —P. 1018–1028.
3. Zhu, H. RF plasma synthesis of YBa $_2$ Cu $_3$ O $_{7-x}$ powders [Текст] / H. Zhu, Y.C. Lau, E. Pfender // Journal of Superconductivity. —1990. —Vol. 3. — № 2. —P. 171–175.
4. Barankin, M.D. Synthesis of nanoparticles in an atmospheric pressure glow discharge [Текст] / M.D. Barankin, Y. Creighton, A. Schmidt // Journal of Nanoparticle Research. —2006. —Vol. 8. —P. 511–517.



5. **McIlroy, D.N.** Nanoparticle formation in microchannel glass by plasma enhanced chemical vapor deposition [Текст] / D.N. McIlroy, J. Huso, Y. Kranov, [et al.] // *Journal of Applied Physics*. –2003. –Vol. 93. – № 9. –P. 5643–5649.

6. **Nitter, T.** Levitation of dust in rf and dc glow discharges [Текст] / T. Nitter // *Plasma Sources Sci. Technol.* –1996. – № 5. – P. 93–111.

7. **Michau, A.** Modeling carbonaceous particle formation in an argon graphite cathode dc discharge [Текст] / A. Michau, G. Lombardi, L. Colina

[et al.] // *Plasma Phys. Control. Fusion*. –2010. – № 52. – P. 124014(1–10).

8. **Месси, Г.** Отрицательные ионы [Текст] / Г. Месси; пер. с англ. –М.: Мир, 1979. – 429 с.

9. **Смирнов, Б.М.** Физика слабоионизованного газа в задачах с решениями [Текст] / Б.М. Смирнов; 3-е изд., –М.: Наука, 1985. – 424 с.

10. **Райзер, Ю.П.** Физика газового разряда [Текст] / Ю.П. Райер; 3-е изд., перераб. и доп. –Долгопрудный: Изд. дом «Интеллект», 2009. – 734 с.

REFERENCES

1. **Alexandrov S., Kretusheva I., Mishin M.** Atmospheric pressure plasma enhanced CVD of Fe nanoparticles, *ECS Transactions*, 2009, Vol. 25, pp. 943–951.

2. **Chen. C., Bai H., Chein H.M.** Continuous generation of TiO₂ nanoparticles by an atmospheric pressure plasma enhanced process, *Aerosol Science and Technology*, 2007, Vol. 41, pp. 1018–1028.

3. **Zhu H., Lau Y.C., Pfender E.** RF plasma synthesis of YBa₂Cu₃O_{7-x} powders, *Journal of Superconductivity*, 1990, Vol. 3, No. 2, pp. 171–175.

4. **Barankin M.D., Creighton Y., Schmidt A.** Synthesis of nanoparticles in an atmospheric pressure glow discharge, *Journal of Nanoparticle Research*, 2006, Vol. 8, pp. 511–517.

5. **McIlroy D.N., Huso J., Kranov Y., Marchinek J. et al.** Nanoparticle formation in microchannel glass

by plasma enhanced chemical vapor deposition, *Journal of Applied physics*, 2003, Vol. 93, No. 9, pp. 5643–5649.

6. **Nitter T.** Levitation of dust in rf and dc glow discharges, *Plasma Sources Sci. Technol.*, 1996, № 5, pp. 93–111.

7. **Michau A., Lombardi G., Colina Delacqua L., Redolfi M. et al.** Modeling carbonaceous particle formation in an argon graphite cathode dc discharge, *Plasma Phys. Control. Fusion*, 2010, № 52, pp. 124014–1–10.

8. **Messi G.** Negative ions. Moscow, Mir, 1979. 429 p. (rus)

9. **Smirnov B.M.** Physics of weakly ionized gas. Moscow, Nauka, 1985. 424 p. (rus)

10. **Raiser Yu.P.** Gas Discharge Physics. Moscow, Intellect, 2009. 734 p. (rus)

МИШИН Максим Валерьевич — кандидат физико-математических наук, докторант кафедры «Физикохимия и технологии микросистемной техники» Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
maximvmishin@gmail.com

АЛЕКСАНДРОВ Сергей Евгеньевич — доктор химических наук, заведующий кафедрой «Физикохимия и технологии микросистемной техники» Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
salexandrov@spbstu.ru.

УДК 681.787

*Т.Н. Бабенко, А.Ю. Голяева, П.Ю. Лобанов,
И.С. Мануйлович, О.Е. Сидорюк*

ОЦЕНКА КАЧЕСТВА ДЕТАЛЕЙ ИЗ ОПТИЧЕСКОГО СИТАЛЛА ПОСРЕДСТВОМ ЛАЗЕРНОЙ ФАЗОСДВИГАЮЩЕЙ ИНТЕРФЕРОМЕТРИИ

*T.N. Babenko, A.Yu. Golyaeva, P.Yu. Lobanov,
I.S. Manuylovich, O.E. Sidoryuk*

M.F. Stelmakh «Polus» Research and Development Institute
3, build. 1 Vedenskogo St., Moscow, 117342, Russia.

QUALITY EVALUATION FOR OPTICAL GLASS-CERAMICS PARTS USING LASER PHASE-SHIFTING INTERFEROMETRY

Статья посвящена уточнению критериев контроля свильности оптических ситаллов, введению для них количественных характеристик качества с помощью методик фазосдвигающей интерферометрии, включающих построение карт локальных искажений волнового фронта в объеме материала.

ФАЗОСДВИГАЮЩАЯ ИНТЕРФЕРОМЕТРИЯ, СВИЛИ, СИТАЛЛ, ИСКАЖЕНИЯ ВОЛНОВОГО ФРОНТА.

The article is devoted to refinement of the criteria of striae control of optical glass-ceramics, introduction of quantitative characteristics through the use of phase-shifting interferometry techniques with the construction of local wavefront distortion maps in the material volume.

PHASE-SHIFTING INTERFEROMETRY, STRIAE, GLASS-CERAMICS, WAVEFRONT DISTORTION.

В различных прецизионных приборах стеклокерамика с низкими значениями температурных коэффициентов линейного расширения (ТКЛР) нашла широкое применение в качестве конструкционного материала (для базовых блоков крупногабаритной оптики, литографии, корпусов оптических резонаторов, интерферометров и т. п.). Чем более жесткие требования потребители предъявляют к используемым композитам, тем выше оказывается роль операций контроля их физико-химических характеристик. Поскольку современные технологии производства не позволяют обеспечивать выпуск ситаллов с полным отсутствием свилей (нитевидных и ленточных флуктуаций показателя преломления), актуальна задача разработки методик оперативных и достоверных измерений однородности материала, выбора критериев однородности отдельных заготовок для произ-

водства тех или иных деталей.

Целью исследований настоящей работы являлось уточнение критериев контроля свильности оптических ситаллов, введение в него количественных характеристик посредством использования методик фазосдвигающей интерферометрии с построением карт локальных искажений волнового фронта в объеме материала. Анализ подвергались детали конструкций резонаторов лазерных гироскопов [1], изготовленные из серийного ситалла марки СО-115М. Образцы представляли собой диски с плоскопараллельными полированными гранями.

В настоящее время, несмотря на долгую историю исследований качества оптических материалов, не существует, к сожалению, единой системы классификации свилей и общепринятой методики их контроля. Известны несколько довольно распространенных подходов анализа однородности



материалов, отраженных в существующих национальных и международных стандартах [2–7]. Сами принципы их построения (в основном, с использованием тенеграфических методик [8, 9]) не подвергаются критике в современных исследованиях. Разногласия возникают в вопросах детерминации экспериментальных условий, при определении оптимальных параметров измерительных установок, на путях перехода от качественных оценок к количественным характеристикам, при верификации методик калибровки полученных результатов.

В стандартизованных методиках [2–7] логика контроля не ставит на первый план точное измерение локальных искажений волнового фронта и сравнение полученных значений с какой-либо принятой шкалой. Инструментами для количественных оценок в тенеграфических исследованиях устанавливаются наборы контрольных образцов сравнения (с предельно допустимыми дефектами), которые предназначены для определения пороговых уровней искажений волнового фронта, границ, характерных для соответствующих классов при сертификации оптических материалов по свильности.

В частности, у образцов сравнения, обязательных для контроля согласно ГОСТам [2, 4], разность хода, вносимая в волновой плоский фронт искусственной свилью первой категории, составляет 50 нм, а свилью второй – 100 нм [10]. В стандарте [7] установлен единственный ориентир – свили с соответствующим искажением величиной 30 нм. А наиболее детальная шкала указана в документе [3]: 10, 15, 30 и 60 нм.

Естественно, отсутствие единой методики и общепринятой шкалы качества оптических материалов с точки зрения свильности затрудняет сопоставление результатов разных исследователей и принятие адекватного решения в производимых оценках. Более того, особенности самих процедур испытаний могут быть причиной разногласий в их итогах [10].

Как наиболее плодотворное может, видимо, рассматриваться простое решение существующей проблемы: переход на прямой метод интерферометрического контроля ло-

кальных неоднородностей оптического материала. Если с его помощью производится метрологическая аттестация образцов сравнения, применяемых для определения границ в различных классификациях качества материала, то в ряде случаев целесообразно отказаться от применения теневых методов и набора контрольных образцов (промежуточного и лишнего звена). Конечно, речь не идет о крупногабаритных заготовках или предварительном грубом контроле. Это рационально, в первую очередь, для анализа относительно тонких деталей с плоскопараллельными полированными гранями.

Таким образом могут быть достигнуты единство измерений и однозначность оценок качества оптических материалов. По результатам испытаний, без дополнительных процедур, оценка свили может быть определена набором численных параметров: локальным искажением волнового фронта (или его удельным значением, нормированным на единицу длины хода лучей в образце), ее геометрическими размерами, максимальным градиентом показателя преломления и т. п.

Поэтому в настоящей работе для анализа деталей из ситалла марки СО-115М, получения количественных характеристик их свильности использовалась методика фазосдвигающей интерферометрии [11] с построением карт локальных искажений волнового фронта в объеме материала. Отдельные результаты сопоставлялись с данными, полученными тенеграфическим методом.

Все исследованные образцы были изготовлены из ситалла, прошедшего еще на стадии заготовок предварительный отбор по двулучепреломлению материала [12] (т. е. более грубый контроль согласно [13]). Готовые детали, подлежавшие контролю на свильность, не обнаруживали двулучепреломления.

Экспериментальная установка для контроля свильности материала оптических деталей

В наших исследованиях использовалась установка на основе фазосдвигающего лазерного интерферометра Физо фирмы Zygo. Ее ключевые элементы представлены

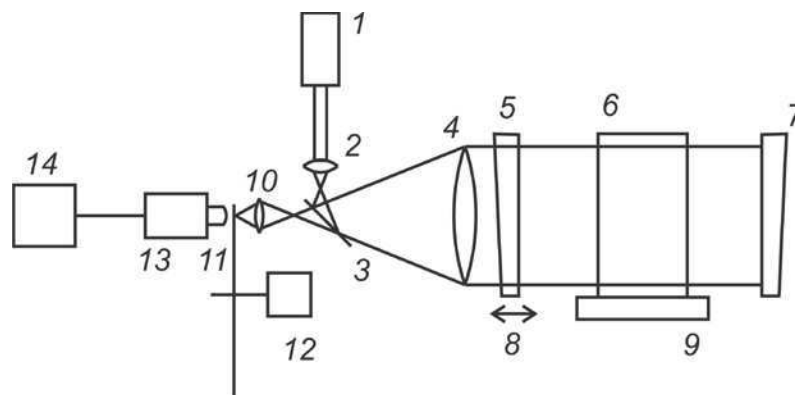


Рис. 1. Принципиальная схема контроля объемных свилей посредством лазерного интерферометра Физо:

1 – He-Ne лазер; 2, 4 – линзы коллиматора; 3 – светоделительная пластина; 5 – опорная пластина; 6 – исследуемый образец; 7 – возвратное зеркало; 8 – пьезодвигатель; 9 – держатель образца; 10 – объектив; 11 – экран; 12 – двигатель; 13 – цифровая видеокамера; 14 – компьютер с монитором

на схеме, приведенной на рис.1.

Луч гелий-неонового лазера 1 с помощью коллиматора на базе линз 2, 4 и полупрозрачного зеркала 3 преобразуется в параллельный пучок света, проходящий через пластины 5 и 7, плоские грани которых, обращенные друг к другу, установлены параллельно и обеспечивают условия интерференции отраженных от них волн. Изображение интерференционной картины с помощью линзы 4 и объектива 10 формируется на экране 11, который представляет собой шлифованную поверхность оптического стекла и обеспечивает регистрацию проецируемого изображения с обратной стороны посредством цифровой видеокамеры 13, сопряженной с компьютером 14. Пластина экрана 11 выполнена в форме плоского диска и установлена на валу двигателя 12, приводящего ее во вращение, для усреднения во времени получаемой картины и повышения качества интерферограмм.

Для пластин 5 и 7 характерна небольшая клиновидность, обеспечивающая выведение из интерференционных процессов нежелательного влияния нерабочих поверхностей. В пространстве между опорными пластинами располагается исследуемый образец 6 с целью выявления вносимых им искажений плоского волнового фронта. Образец крепится на держателе 9, позво-

ляющем производить регулировку наклона образца в двух взаимно перпендикулярных направлениях. Образец представляет собой пластину с полированными плоскопараллельными гранями.

Пластина 5 интерферометра Физо установлена на пьезоэлектрическом актуаторе, позволяющем производить управляемые микроперемещения опорной пластины для выполнения фазовой развертки, в ходе которой специальная компьютерная программа выполняет анализ цифровых изображений интерферограмм, непрерывно регистрируемых видеокамерой.

Итогом измерительного процесса является построение для исследуемого образца карты локальных искажений волнового фронта, обусловленных оптической неоднородностью объема материала.

Перед процедурой контроля свильности производилось измерение плоскостности каждой из поверхностей исследуемых деталей на той же установке, однако образец в этом случае располагался на месте задней пластины 7, заменяя ее. Задняя поверхность при этом смачивалась иммерсионной жидкостью для устранения ее влияния. Небольшие фазовые сдвиги, связанные с отклонением профиля поверхностей от идеальной плоскости, принимались во внимание в ходе анализа искажений волнового фронта излучения, проходящего через образцы.

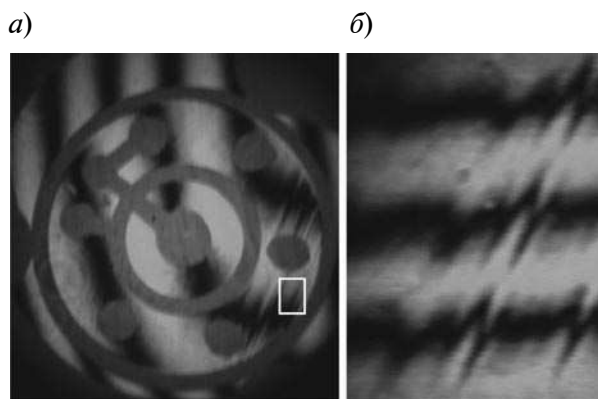


Рис. 2. Интерферограммы с локальными искажениями, обусловленными наличием свилей в объеме ситалла: *а* – общий вид; *б* – фрагмент общей картины (обозначен прямоугольным контуром) с увеличением в 10 раз.
В качестве образца – деталь в виде диска с отверстиями (элемент датчика лазерного гироскопа)

Результаты исследований свилей в деталях из ситалла СО-115М

На рис. 2 представлены примеры интерферограмм с локальными искажениями, которые обусловлены наличием свилей в объеме материала. Образцом служил один из элементов датчика лазерного гироскопа, изготовленного из серийного ситалла марки СО-115М, – диск блока электродов. Диаметр дисковой детали составлял 45 мм, толщина – 7 мм. Рис. 2, *а* отражает общую картину, в то время как рис. 2, *б* –

увеличенную область с наблюдаемыми неоднородностями. По сравнению с результатами традиционных тенеграфических исследований (рис. 3, *а*) метод фазосдвигающей интерферометрии дает наглядные преимущества в чувствительности контроля. Количественные характеристики обнаруживаемых свилей на том же участке образца (при оптимальном его наклоне) после выполнения всех компьютерных процедур обработки данных отражает карта локальных искажений плоского волнового фронта (рис. 3, *б*) и их презентация в 3D-формате (рис. 3, *в*).

В измерительной установке излучение дважды проходит исследуемый образец. Но для определенности в характеристике материала все представленные результаты пересчитаны на один проход. Таким образом, в рассматриваемой области отдельные нитевидные свиля вносят искажения Δ от 15 до 60 нм. В пересчете на единицу длины это соответствует величинам от 21 до 86 нм/см.

Из полученных данных математическими методами без труда можно определять значения крутизны локальных искажений, параметры их пространственной периодичности в потоке свилей и другие характеристики.

Например, для свильного участка рассматриваемой детали (см. рис. 3, *б* или рис. 3, *в*) на рис. 4, *а* представлен график искажений волнового фронта, построенный

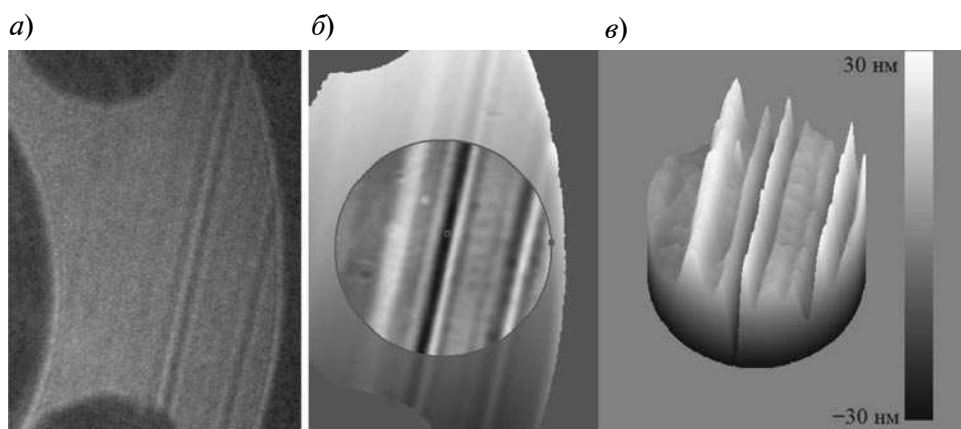


Рис. 3. Результаты исследования свильности в образцах ситалла марки СО-115М тенеграфическим методом (*а*) и посредством фазосдвигающей интерферометрии с построением карты локальных искажений волнового фронта в 2D-(*б*) и 3D-(*в*) форматах

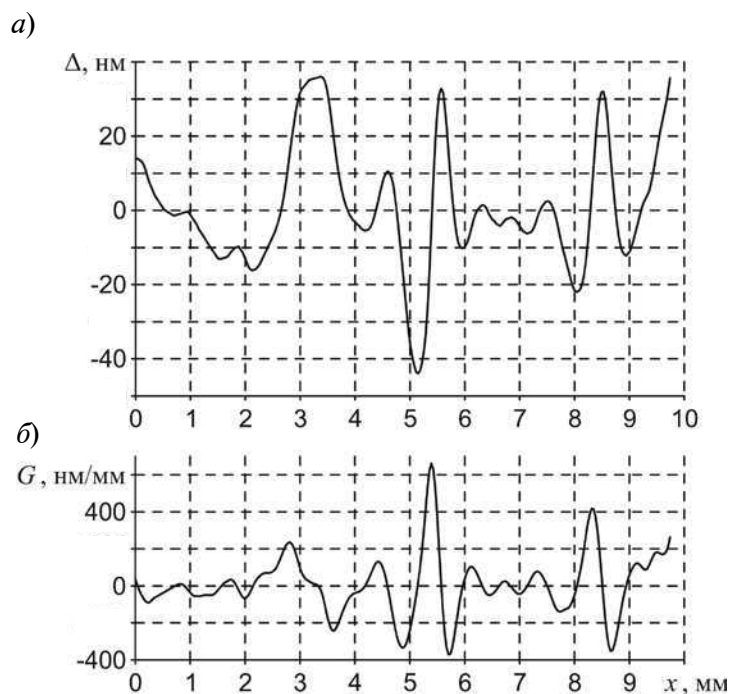


Рис. 4. График искажений волнового фронта (а) и распределение градиента волнового фронта (б), построенные для одной и той же области образца – вдоль направления, перпендикулярного потоку свилей

вдоль направления, перпендикулярного потоку свилей. При этом классификацию и контроль свилей можно провести по градиенту волнового фронта G (рис. 4, б), который показывает резкость изменения длины оптического пути. Ясно, что получить аналогичные характеристики с использованием тенеграфических методов невозможно.

Наличие численных характеристик дает основу для введения более объективных критериев отбора качественных изделий. Не исключено, что открываемый этим путь к сбору дополнительной информации о качестве материала в условиях производства

деталей прецизионных приборов может оказаться основой для установления не обнаруженных до этого взаимосвязей тонких физических процессов.

Концептуальное отсутствие образцов сравнения при использовании предлагаемой методики существенно упрощает процесс контроля и интерпретацию его результатов.

Оперативность контроля и полная компьютеризация процесса позволяет использовать методику в условиях промышленного производства, массового выпуска изделий с деталями из оптического ситалла.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Азарова, В.В. Кольцевые газовые лазеры с магнитооптическим управлением в лазерной гироскопии [Текст] / В.В. Азарова, Ю.Д. Голяев, В.Г. Дмитриев. // Квантовая электроника. – 2000. – Т. 30. – № 2. – С. 96–104.
2. ГОСТ 3521-81. Стекло оптическое. Метод определения бессвильности [Текст]. – М.: Изд-во стандартов, 1998. – 7 с.
3. Striae in optical glass [Text]: Optical glasses. Schott Technical information. TIE-25. – 2006. – 20 p.
4. ГОСТ 23136-93. Материалы оптические. Параметры [Текст]. – М.: Изд-во стандартов, 1995. – 24 с.
5. Military specification, glass, optical [Text]. – MIL-G-174B. U.S. Dept. of Defense, 1986. – 16 p.
6. American national standard for optics and electro-optical instruments – optical glass [Text]: ANSI/OEOSC OP3.001-2001. – 2008. – 27 p.
7. Optics and optical instruments. Preparation of drawings for optical elements and systems [Text]:



Part 4. Material imperfections – Inhomogeneity and striae; International standard ISO 10110-4. – 1997. – 12 p.

8. **Васильев, Л.А.** Теневые методы [Текст] / Л.А. Васильев. – М.: Наука, 1968. – 402 с.

9. **Stroud, J.S.** Striae quality grades for optical glass [Text] / J.S. Stroud // Optical Engineering. – 2003. – Vol. 42. – № 6. – P. 1618 – 1624.

10. **Доладугина, В.С.** Оценка свильности в оптических стеклах [Текст] / В.С. Доладугина // Оптический журнал. – 2004. – Т. 71. – № 12.

– С. 41 – 47.

11. **Greivenkamp, J.E.** Phase shifting interferometry in optical shop testing [Text] / J.E. Greivenkamp, J.H. Bruning; 2nd ed., ed. Malacara D. – New York: Wiley, 1992. – 420 p.

12. **ГОСТ 3519-91.** Материалы оптические. Методы определения двулучепреломления [Текст] – М.: Изд-во стандартов, 1992. – 17 с.

13. Optical properties of zerodur [Text]: Advanced optics. Schott Technical information. TIE-43. – 2007. – 12 p.

REFERENCES

1. **Azarova V. V., Golyaev Yu. D., Dmitriev V. G.** Ring gas lasers with magneto-optical control for laser gyroscope (invited paper). Quantum Electron, 2000, vol.30 (2), pp. 96–104. (rus)

2. Optical glass. Method for determination of instric. GOST 3521-81. Moscow, Publishing House of Standards, 1998. 7 p. (rus)

3. Striae in optical glass Optical glasses. Schott Technical information. TIE-25. 2006. 20 p.

4. Optical materials. Parameters. GOST 23136-93. Moscow, Publishing House of Standards, 1995. 24 p. (rus)

5. Military specification, glass, optical ; MIL-G-174B. U.S. Dept. of Defense, 1986. 16 p. Defense, 1986. – 16 p.

6. American national standard for optics and electro-optical instruments - optical glass: ANSI/OEOSC OP3.001-2001; 2008. 27 p.

7. Optics and optical instruments. Preparation of drawings for optical elements and systems. Part 4.

Material imperfections – Inhomogeneity and striae; International standard ISO 10110-4. 1997. 12 p.

8. **Vasiliev L.A.** Schlieren Methods. Moscow, Nauka, 1968. 402 p. (rus)

9. **Stroud J.S.** Striae quality grades for optical glass. Optical Engineering. 2003, vol. 42, № 6, pp. 1618–1624.

10. **Doladugina V.S.** Evaluating the stria content in optical glasses. Journal of Optical Technology, 2004, vol. 71, (12), pp. 836–841.

11. **Greivenkamp J.E.** Phase shifting interferometry in optical shop testing; 2nd ed., ed. Malacara D. New York: Wiley, 1992. 420 p.

12. Optical materials. Methods for determination of birefringence. GOST 3519-91. Moscow, Publishing House of Standards, 1992. 17 p. (rus)

13. Optical properties of zerodur [Text]: Advanced optics. Schott Technical information. TIE-43, 2007, 12 p.

БАБЕНКО Татьяна Николаевна – студентка Московского института электроники и математики Национального исследовательского университета «Высшая школа экономики», инженер ОАО НИИ «Полюс» им. М.Ф. Стельмаха.

117342, г. Москва, ул. Введенского, 3, к. 1

ГОЛЯЕВА Анастасия Юрьевна – аспирантка ОАО НИИ «Полюс» им. М.Ф. Стельмаха.

117342, г. Москва, ул. Введенского, 3, к. 1

ЛОБАНОВ Петр Юрьевич – ведущий инженер ОАО НИИ «Полюс» им. М.Ф. Стельмаха.

117342, г. Москва, ул. Введенского, 3, к. 1

МАНУЙЛОВИЧ Иван Сергеевич – кандидат физико-математических наук, научный сотрудник ОАО НИИ «Полюс» им. М.Ф. Стельмаха.

117342, г. Москва, ул. Введенского, 3, к. 1

СИДОРЮК Олег Евгеньевич – кандидат физико-математических наук, начальник лаборатории ОАО НИИ «Полюс» им. М.Ф. Стельмаха.

117342, г. Москва, ул. Введенского, 3, к. 1

O.E.Sidoryuk@gmail.com

УДК 621.391:681.142

В.Н. Демкин, В.А. Степанов, М.В. Шадрин

СИСТЕМЫ БЫСТРОГО ПРОТОТИПИРОВАНИЯ С ЛАЗЕРНЫМ СКАНИРОВАНИЕМ

V.N. Demkin, V.A. Stepanov, M.V. Shadrin

Ryazan State University named S.A. Esenin,
46 Svobody St., Ryazan, 390000, Russia.

RAPID PROTOTYPING SYSTEMS WITH LASER SCANNING

В статье рассматривается влияние факторов, ограничивающих точность лазерных триангуляционных измерителей и особенности их применения в системах быстрого прототипирования. Особое внимание уделяется резкому изменению коэффициента отражения, влиянию наклона и теневых зон. Для улучшения точности сканирования и снижения факторов, ограничивающих возможности триангуляционных измерителей, предлагается новая ортогональная оптическая конструкция лазерного датчика.

ЛАЗЕРНАЯ ТРИАНГУЛЯЦИЯ, ПРОТОТИПИРОВАНИЕ, ЧПУ.

The article considers the influence of the factors limiting the accuracy of the laser triangulation measuring instruments and especially their applications in rapid prototyping. Particular attention is paid to an abrupt change of the reflection coefficient, the influence of slope and shadow areas. To improve scanning accuracy and reduce the factors that limit the possibilities of triangulation gauges, we propose a new orthogonal to the optical design of the laser sensor.

LASER TRIANGULATION, PROTOTYPING, CNC.

Одним из современных методов формообразования является быстрое прототипирование. В нем используются лазерные сканеры для создания компьютерной 3D-модели и станки с числовым программным управлением (ЧПУ). Объединение их возможностей способствует созданию систем быстрого прототипирования, в которых элементом воздействия может быть фрезер, экструдер, лазер. Статья посвящена особенностям создания таких систем и исследованию факторов, ограничивающих достижение высокой точности копирования.

Для управления станком с ЧПУ необходимо применять только управляющую программу (УП). В настоящее время в России существует довольно много предприятий, создающие УП вручную с помощью обычного блокнота, или непосредственно на пульте УЧПУ (устройство числового программного управления). Для создания УП

требуется 3D-модель объекта, который необходимо изготовить. Компьютерная модель делается либо непосредственно в САМ, либо импортируется в нее в специальном формате, который хранит сведения о размерах объекта, полученных из других пакетов 3D-графики. Такой подход позволяет существенно упростить процесс подготовки УП на G-коде. Однако даже при наличии 3D-модели объекта сделать программу на G-коде для объекта, имеющего сложный рельеф, является трудоемкой задачей.

Создание компьютерных 3D-моделей требует наличия мощных и дорогостоящих программных пакетов для работы с 3D-графикой. Подготовка 3D-модели – это долгий процесс, требующий от специалиста высокой квалификации и большого опыта. Часто уже имеется объект реального мира, который необходимо внедрить в производство. Кроме того, в большинстве случаев

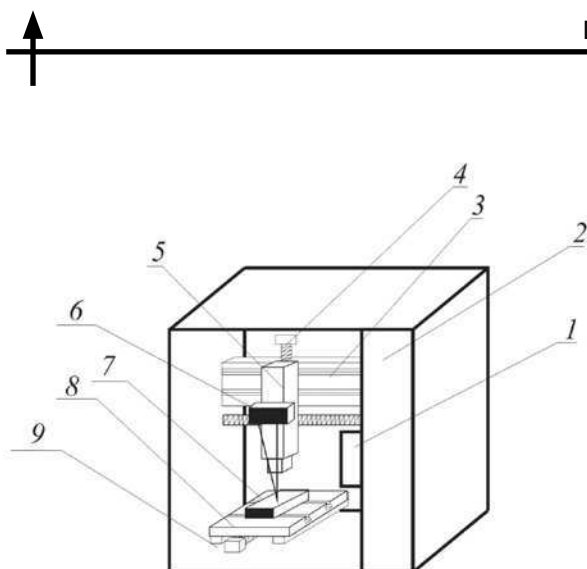


Рис. 1. Состав типичной системы прототипирования:

1 – устройство синхронизации сканера с приводами осей; 2 – блок управления осями приводов; 3, 9, 4 – оси X, Y, Z соответственно; 5 – рабочий орган станка; 6 – триангуляционный лазерный датчик; 7 – сканируемый объект; 8 – рабочий стол

мастеру проще создать одну реальную модель из мягкого материала и далее получить ее цифровую копию с помощью системы прототипирования, чем делать компьютерную 3D-модель. В общем случае стандартная система быстрого прототипирования (рис. 1) состоит из лазерного сканера, станка с ЧПУ или 3D-принтера, модуля синхронизации сканирования и компьютера, который управляет станком по управляющей программе, написанной на G-коде.

Одной из наиболее важных частей системы прототипирования является сканирующий модуль, который крепится к рабочему органу станка. Он формирует объемное облако точек сканируемого объекта, и каждая точка соответствует определенному замеру на поверхности этого объекта. Облако точек обрабатывается компьютером; результатом является трехмерная STL-модель, на основе которой разрабатывается УП. Время сканирования обычно составляет от нескольких минут до часа в зависимости от выбранного разрешения, области сканирования и технических характеристик применяемого сканера.

В настоящее время применяются как контактные, так и бесконтактные устройства сканирования. Контактные зонды обладают высокой точностью и повторяемо-

стью замеров. Однако невысокая скорость сканирования и наличие соприкасающихся частей сильно ограничивают использование данного метода. Среди оптических сканеров наибольшее распространение получили лазерные триангуляционные измерители, обладающие высокой скоростью сканирования и относительно большим диапазоном измерения. Данный метод основан на изменении положения δz изображения зондирующего лазерного пятна на фотосенсоре пропорционально удалению ΔZ объекта относительно триангуляционного измерителя (рис. 2). В простейшем случае прибор состоит из источника 3 когерентного (лазер) либо некогерентного (например, световозлучающий диод) света, коллиматора 2, фокусирующего пучок на поверхность в виде пятна, линии или подсветки другой формы; объектива 4; фотосенсора 5 – линейки CCD/CMOS (для пятна) либо матрицы CCD/CMOS (для линии).

При этом точность вычисления расстояния до объекта зависит от размера светового зондирующего пятна и точности нахождения его центра. Оптический триангуляционный датчик работает с рассеянным отра-

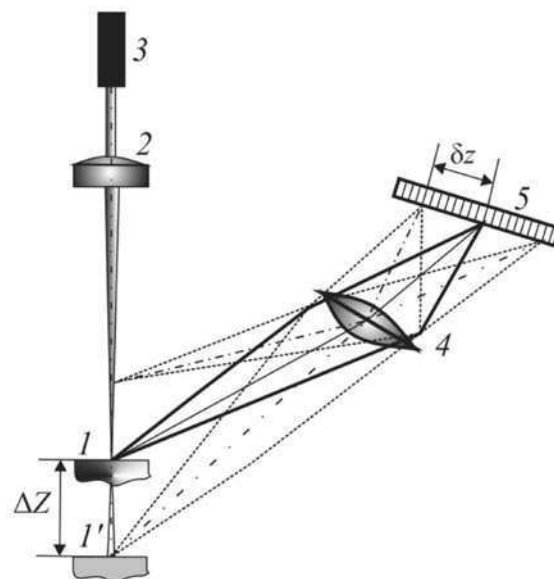


Рис. 2. Принцип оптической триангуляции: 1, 1' – сканируемый объект в двух возможных позициях: в центре рабочего диапазона триангуляционного измерителя (1) и на его краю (1'); 2 – коллиматор; 3 – источник когерентного либо некогерентного света; 4 – линза; 5 – фотосенсор

женным излучением, параметры и точность которого сильно зависят от характеристик поверхности, в том числе от величины шероховатости, ориентации следов механической обработки. Размер и форма распределения интенсивности пятна зондирующего лазерного излучения меняется в зависимости от шероховатости, отражающей способности поверхности, поляризации, наличия микротопологических неровностей, которые представляют собой множество беспорядочно ориентированных микрозеркал, а также при наклоне поверхности. Изменение формы пятна на разных поверхностях будет влиять на точность определения его центра (центроида). В общем случае, чем меньше размер пятна, тем больше разрешение системы и точность нахождения центроида, однако наблюдение слишком малого пятна уменьшает глубину резкости формируемого изображения и затрудняет работу алгоритмов поиска центра распределения отраженного импульса зондирующего излучения с субпиксельной точностью, в которых для интерполяции сигнала необходимо получить данные с нескольких пикселей.

Форма зондирующего пятна не всегда является круглой, и его изображение на фотоприемнике может быть асимметричным. Именно поэтому существующие алгоритмы поиска энергетического центра пятна (например, центр тяжести, медианный метод, аппроксимация функцией Гаусса и др.) показывают высокую точность только на поверхностях, дающих равномерное

распределение индикатрисы рассеяния в пространстве и, соответственно, практически идеальное Гауссово распределение интенсивности в изображении зондирующего пятна на фотосенсоре [1–3]. В реальности приходится измерять и сканировать объекты, имеющие сложную поверхность с острыми краями, гранями, ребрами, ступеньками. В результате оптический пучок, попадая, например, на острый край объекта, будет зарегистрирован фотосенсором не полностью, а с искажениями. На рис. 3, а–в показаны некоторые случаи деформации распределения интенсивности отраженного лазерного сигнала на фотосенсоре для сложного рельефа поверхности.

При попадании искаженного сигнала на фотосенсор распределение интенсивности его изображения будет несимметричным и может существенно отличаться от гауссиана. При построении 3D-модели с рельефом, аналогичным показанному на рис. 3, это будет проявляться в виде загибания (размытости) краев, резких выбросов, т. е. систематической погрешности в определении координат поверхности объекта. Повышение разрешающей способности камеры при данном типе ошибок приводит к более значительным искажениям распределения интенсивности на фотосенсоре в пиксельном выражении.

Еще одной причиной, ограничивающей применение триангуляционных систем, является несовпадение направления измеряемого отраженного сигнала с направлением

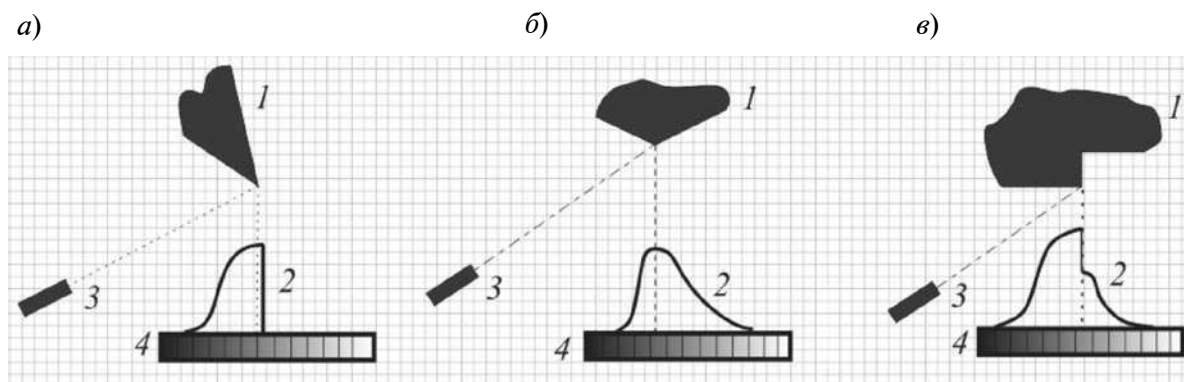


Рис. 3. Примеры влияния сложной поверхности объекта (1) на распределение (2) интенсивности отраженного излучения; 3, 4 — источник света и фотосенсор соответственно. Объекты имеют острый край (а), ребро (б), ступеньки (в)



зондирующего луча; это в свою очередь ведет к возникновению теневых эффектов. Теневые зоны могут возникать в двух случаях: во-первых, когда лазерное излучение не может достигнуть сканируемой зоны, во-вторых, когда отраженное лазерное излучение на пути к фотодетектору встречает препятствие. В этом случае происходит полная потеря информации о форме объекта [4].

Кроме того, причиной возникновения ошибки при сканировании и измерении реальных объектов является резкое изменение отражательной способности поверхности объекта в направлении сканирования. При неравномерном окрасе поверхности, ее высокой текстуризации или сканировании сложного рельефа происходит резкий локальный всплеск интенсивности (блик) из-за наличия большой зеркальной компоненты в отраженном импульсе либо переотражения от частей рельефа. При попадании зондирующего лазерного луча в зону с резким изменением коэффициента отражения происходит изменение формы распределения интенсивности отраженного сигнала на фотосенсоре, что приводит к ошибкам определения центроиды. Последняя смещается в сторону с большей отражательной способностью поверхности, что приводит к искажению формы компьютерной модели в месте резкого изменения коэффициента отражения.

Для определения величины ошибки, связанной с резким изменением коэффициента отражения при лазерном сканировании был проведен эксперимент, позволяющий оценить погрешность, вызванную этим явлением. В поле сканирования помещался специальный плоский цветной шаблон, состоящий из смежных полос с разным коэффициентом отражения, представляющих собой участки поверхности разных цветов. Сканирование проводилось вдоль и поперек шаблона. При этом сохранялся принцип эквидистантности. В зоне смены цвета поверхности наблюдалось резкое изменение высоты профиля на компьютерной 3D-модели, которое проходило по всей границе участков различного окраса поверхности. Величина погрешно-

сти при этом была сопоставима с таковой при сканировании сложных поверхностей. Однако если в первом случае проблему можно решить, используя фильтрацию, то во втором случае такая мера не приводит к положительному результату. Максимальная абсолютная погрешность составила примерно 55–60 мкм для цветов с сильно отличающимся коэффициентом отражения (рис. 4). Таким образом, перечисленные неблагоприятные свойства объектов сильно влияют на качество получаемой трехмерной модели.

По результатам проведенных экспериментов все цвета объектов можно разделить по признаку их отражательной способности на две основные группы: с невысоким и высоким коэффициентами отражения. К первой группе следует отнести фиолетовый, синий, зеленый и голубой цвета, ко второй – белый, желтый, красный и оранжевый. При смежном положении цветов в своей группе погрешность минимальна и почти не различима глазом на компьютерной модели. С такими погрешностями эффективно справляются обычные алгоритмы фильтрации.

Погрешность измерения также зависит от типа зондирующего излучения. В качестве излучающего элемента в триангуляционных сканерах применяется лазер или светодиод. Преимущества лазерного излучения заключаются в высокой монохроматичности,

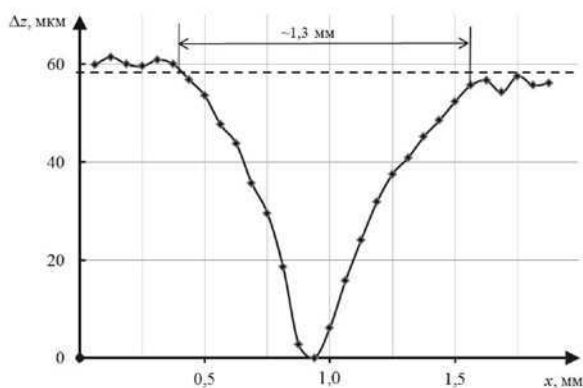


Рис. 4. Изменение высоты 3D-модели плоского цветного шаблона в зоне сканирования вследствие резкого изменения цвета. Пунктиром показан реальный уровень поверхности измеряемого объекта

малой расходимости пучка и высокой контрастности. Однако пространственная когерентность лазерного излучения становится причиной возникновения спекл-картины, которая вносит существенную погрешность в определение центра изображения лазерного пятна [5]. Для уменьшения контраста спеклов используются разные приемы, например, берется пучок не круглой, а вытянутой формы, или применяются алгоритмы, учитывающие корреляционные связи между разными реализациями спеклов. Данные методы не дают существенных результатов. Наибольшие успехи в разрушении пространственной когерентности лазерного излучения достигаются при использовании диодзеров [6, 7] и модулей разрушения пространственной когерентности на основе движущихся диффузных пластин, например Optotune LSR-3000 [8]. Светодиодные излучатели не позволяют достичь большого рабочего диапазона, так как глубина резкости фокусируемого излучения мала. Следовательно, сканеры на основе светодиодов нельзя использовать для объектов, имеющих большой диапазон по глубине. Однако большим преимуществом светодиодов является полное отсутствие пространственной когерентности; в связи с этим нет необходимости в применении дорогостоящих модулей для ее разрушения. Кроме того, пространственное разрешение сканирования прямо пропорционально зависит от диапазона измерения: чем больше диапазон измерения, тем меньше разрешение всей системы. Поэтому при выборе типа зондирующего излучения необходимо учитывать требуемые параметры по размеру сканируемых предметов.

Недостатки триангуляционного метода измерения геометрии объекта налагают ряд ограничений на свойства этих объектов в отношении сканирования. При оцифровке или измерении промышленной детали, имеющей сложную форму или анизотропную поверхность со следами промышленной обработки, полученная модель может требовать достаточно долгой и кропотливой доработки с использованием дорогостоящих специализированных программных пакетов, например Geomagic или Rapid XOR. При этом получение хорошего результата

не может быть гарантировано.

Для борьбы с факторами, искажающими истинную форму Гауссова сигнала на фотосенсоре, была разработана и запатентована новая оптическая конструкция датчика (рис. 5), которая позволяет получать высококачественные изображения сканируемой области, учитывающие влияние бликов, засветок и «слепых зон» [9]. Отсутствие необходимости использовать дорогостоящее программное обеспечение для дополнительной обработки полученных компьютерных моделей, а также возможность применения более дешевых оптических и электронных компонентов благодаря новой конструкции оптической части датчика, позволяет снижать конечную стоимость готовой системы в несколько раз без ухудшения точностных и потребительских характеристик.

Предложенное техническое решение обладает рядом преимуществ по сравнению со сканерами, которые имеют два канала измерения [10–12], расположенных на одной линии, симметрично по отношению к лазерному источнику. В этих измерителях оба канала измерения принадлежат одной плоскости триангуляции. Отраженный зондирующий пучок одновременно регистри-

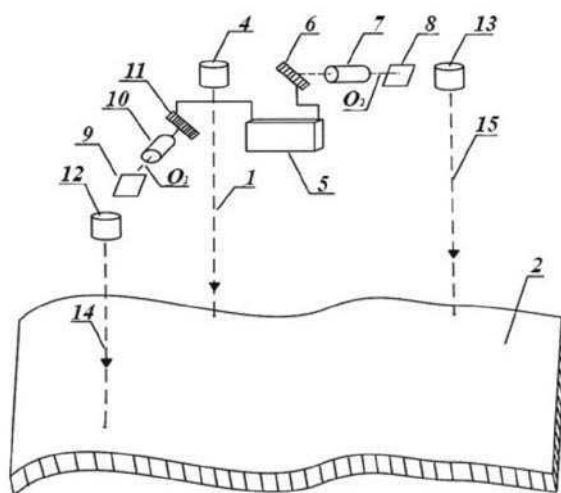


Рис. 5. Оптическая схема ортогонального триангуляционного датчика:

- 1 – направление излучения лазерного источника 4;
- 14, 15 – направления излучения лазерных маркеров 12, 13;
- 2 – поверхность сканируемого объекта;
- 5 – микропроцессор;
- 7, 10 – объективы O_1 и O_2 ;
- 8, 9 – зеркала;
- 6, 11 – фотосенсоры



руется обоими фотосенсорами. При этом практически невозможно отделить истинный сигнал от ложного без сложной программной обработки. Описанный способ позволяет произвести простое усреднение обоих сигналов.

Разработанный метод и созданное устройство позволяют уменьшить влияние теневых эффектов при сканировании объектов со сложной поверхностью и эффективно отделять истинные сигналы от ложных, используя ортогонально расположенные фотосенсоры. Устройство позволяет эффективно бороться с теневыми эффектами, так как при сканировании ряда поверхностей (например, металлических) индикатриса рассеяния искажается преимущественно в одной плоскости, а вероятность присутствия ложного сигнала на обоих фотосенсорах оказывается незначительной. Каждый измерительный канал (см. рис. 5) состоит из объектива 7, 10, снабженного зеркалом 8, 9, и фотосенсора 6, 11. Плоскости триангуляции ортогональны друг другу. Таким образом, объемные лепестки бликов и переотражений будут присутствовать только на одном фотосенсоре и с большой степенью вероятности отсутствовать на втором. Видеосигнал с двух приемных каналов обрабатывается микропроцессором 5 и передается на компьютер.

Наклон измеряемой поверхности также оказывает влияние на точность измерений. Это связано с двумя причинами [13, 14]:

при наклоне поверхности изменяется распределение интенсивности сигнала, регистрируемое фотоприемником;

происходит смещение координат центра пятна на поверхности приемника.

При угле наклона поверхности менее 30° погрешность измерения составляет 20 мкм, а при наклоне более 60° — достигает 60 мкм [15]. Наличие двух лазерных маркеров 12, 13 (по одному в каждой плоскости триангуляции, излучение 14, 15 которых параллельно пучку лазерного зондирующего источника 4) дает возможность измерять локальный наклон в точке зондирования по координатам X и Y , что позволяет эффективно корректировать искажение пятна зондирующего луча на поверхности из-за наклона или радиуса. В поле зрения каждой камеры находятся два лазерных пятна (от зондирующего луча и маркера), изображения которых расположены на известном расстоянии друг от друга, при нулевом наклоне плоской поверхности. Для калибровки прибор помещается над специальным столом, который способен перемещать по вертикальной оси и менять угол наклона шаблона. Калибровка прибора происходит по всему рабочему диапазону для нескольких углов наклона. При сканировании шаблона, расположенного под наклоном, происходит смещение изображений зондирующего и маркерного пятна друг относительно друга. На основе этого строятся калибровочные кривые, которые позволяют при сканировании практически полностью компенсировать влияние наклона. По краям рабочего диапазона максимальная погрешность измерения составила 12 мкм.

На рис. 6, а показан результат сканирования триангуляционным датчиком со стандартной оптической схемой, а на рис. 6, б — 3D-модель, полученная с использованием ортогонального триангуляционного датчика.

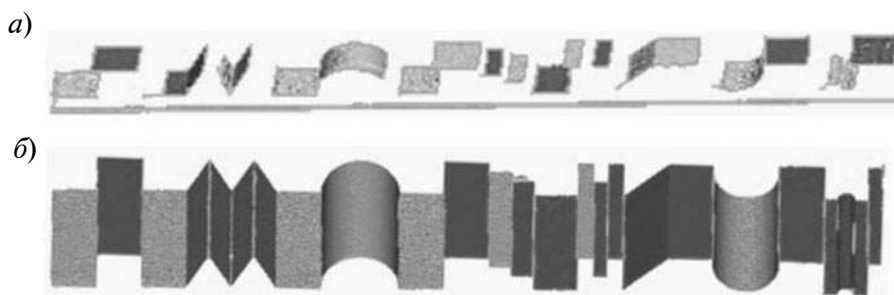


Рис. 6. Сравнение компьютерных моделей калибра, отсканированных обычным триангуляционным датчиком (а) и с помощью ортогонального триангуляционного датчика (б)

Таким образом, проведенные исследования дают возможность создавать современные системы быстрого прототипирования с применением триангуляционных датчиков, способных с высокой точностью копировать предметы реального мира.

Применение технологии лазерного прототипирования с использованием триангуляционных датчиков возможно во многих сферах. Модели, полученные методом лазерного прототипирования, можно использовать в компьютерной анимации совместно со станком ЧПУ,

3D-принтером или системой лазерного спекания и плавления (SLS/SLM). Потребителями данных систем могут быть мебельная, ювелирная, медицинская, автомобильная и военная промышленность. Разработанная оптическая схема триангуляционного датчика с ортогональным расположением сенсоров позволяет работать со сложными промышленными объектами. Полученные цифровые копии не требуют практически никаких доработок в специальных пакетах для работы с облаком точек и 3D-моделями.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Плотников, С.В.** Сравнение методов обработки сигналов в триангуляционных системах [Текст]/ С.В. Плотников // Автотриметрия. — 1995. — № 6. — С. 58–63.
2. **Демкин, В.Н.** Лазерные методы и средства контроля геометрических размеров изделий [Текст]/ В.Н. Демкин, В.А. Степанов // Измерительная техника. — 2008. — № 2. — С. 32–35.
3. **Демкин, В.Н.** Возможности триангуляционного лазерного метода измерения поверхности сложного рельефа [Текст]/ В.Н. Демкин, В.А. Степанов // Метрология. — 2007. — № 8. — С. 32–35.
4. **Демкин, В.Н.** Измерение профиля шероховатости материалов триангуляционным способом [Текст]/ В.Н. Демкин, В.А. Степанов// Метрология. — 2008. — № 6. — С. 60–65.
5. **Hausler, G.** Three-dimensional sensors – potentials and limitations [Text]: Handbook of Computer Vision and Application. Vol. 1 /G. Hausler. — San Diego: Academic Press, 1999. — P. 485–506.
6. **Crags, G.** Low speckle line generator using a semiconductor laser source [Text]/ G. Crags, Y. Meuret// Proc. SPIE 8433 Laser Sources and Applications. — Bellingham, Washington: Published by SPIE, 1 June, 2012, — 8433OM.
7. **Crags, G.** Characterization of a low-speckle laser line generator [Text]/ G. Crags, Y. Meuret // Applied Optics. — 2012. — Vol. 51.—P. 4818–4826.
8. **Blum, M.** Reducing laser speckle [Text]/ M. Blum // Laser + Photonics — 2011. — Vol. 3. —P. 62–63.
9. **Пат. Российская Федерация МПК⁷ G 01 B 11/24.** Устройство для лазерного сканирования [Текст]/ Демкин В.Н., Демкин А.В.,

Шадрин М.В.; заявители и патентообладатели В.Н. Демкин, А.В. Демкин, М.В. Шадрин. — 2012110279/28; заявл. 16.03.2012; опубл. 20.11.2012. Бюл. № 32, 2012. — 285 с.: илл.

10. **Trucco, E.** Acquisition of consistent range data using local calibration [Text]/ E. Trucco, R.B. Fisher // Proceeding IEEE Int. Conference on Robotics and Automation. — San Diego, California: IEEE Computer Society Press, 1994. — P. 3410–3415.

11. **Buzinsky, M.** Performance characteristics of range sensors utilizing optical triangulation [Text] / M. Buzinsky, A. Levine, W.H. Stevenson// IEEE/AESS National Aerospace and Electronics Conference Proc., 1992. — P. 1230–1236.

12. **Kooijman, K.S.** Video rate laser scanner: Considerations on triangulation optics, detectors and processing circuits [Text]/ K.S. Kooijman, J.L. Horijon //Optics, Illumination, and Imaging Sensing for machine Vision VIII, Proc. SPIE. — 1993. — Vol. 2065. — P. 251–263.

13. **Вертопрахов, В.В.** Влияние формы объекта и ориентации его поверхности на точность лазерных триангуляционных измерений / В.В. Вертопрахов // Автотриметрия. — 1995. — № 6. — С. 64–68.

14. **Wang, Sh.-Q.** New principle formula of optical triangulation displacement measurement based on light scattering from rough surface [Text]/ Sh.-Q. Wang, B.H. Zhuang, W. Zhang // Proc. SPIE.—1997. — Vol. 2909. — P. 37–42.

15. **Shiou, F.-J.** Intermittent process hybrid measurement system on the machining centre [Text]/ F.-J. Shiou, M.-J. Chen// International Journal of Production Research. — 2003. — Vol. 41. — P. 4403–4427.

REFERENCES

1. **Plotnikov S.V.** Srvnenie metodov obrabotki signalov v trianguljacionnyh sistemah. Avtometrija, 1995, No. 6, pp. 58–63. (rus)

2. **Demkin V.N., Stepanov V.A.** Lazernye metody i sredstva kontrolja geometricheskikh razmerov izdelij. Izmeritel'naja tehnika, 2008, No. 2, pp. 32–35. (rus)



3. **Demkin V.N., Stepanov V.A.** Vozможности trianguljacionnogo lazernogo metoda izmerenija poverhnosti slozhnogo rel'efa. *Metrologija*, 2007, № 8, pp. 32–35. (rus)
4. **Demkin V.N., Stepanov V.A.** Izmerenie profilja sherohovatosti materialov trianguljacionnym sposobom. *Metrologija*, 2008, № 6, pp. 60–65. (rus)
5. **Hausler G.** Three-dimensional sensors – potentials and limitations : Handbook of Computer Vision and Application. Vol. 1. San Diego: Academic Press, 1999, pp. 485–506. (rus)
6. **Crags G., Meuret Y.** Low speckle line generator using a semiconductor laser source. *Proc. SPIE 8433 Laser Sources and Applications*, Bellingham, Washington: Published by SPIE, 1 June, 2012, 8433OM.
7. **Crags G., Meuret Y.** Characterization of a low-speckle laser line generator. *Applied Optics*, 2012, Vol. 51, pp. 4818–4826.
8. **Blum M.** Reducing laser speckle. *Laser + Photonics*, 2011, Vol. 3, pp. 62–63.
9. **Demkin V.N., Demkin A.V., Shadrin M.V.** Ustrojstvo dlja lazernogo skanirovanija. Patent RF, № 122167, 2012. (rus)
10. **Trucco E., Fisher R.B.** Acquisition of consistent range data using local calibration. *Proceeding IEEE Int. Conference on Robotics and Automation*. – San Diego, California: IEEE Computer Society Press, 1994, pp. 3410–3415.
11. **Buzinsky M., Levine A., Stevenson W.H.** Performance characteristics of range sensors utilizing optical triangulation. *IEEE/AESS National Aerospace and Electronics Conference Proc.*, 1992, pp. 1230–1236.
12. **Kooijman K.S., Horijon J.L.** Video rate laser scanner: Considerations on triangulation optics, detectors and processing circuits. *Optics, Illumination, and Imaging Sensing for machine Vision VIII*, *Proc. SPIE*, 1993, Vol. 2065, pp. 251–263.
13. **Vertoprahov V.V.** Vlijanie formy ob'ekta i orientacii ego poverhnosti na tochnost' lazernyh trianguljacionnyh izmerenij. *Avtometrija*, 1995, № 6, pp. 64–68. (rus)
14. **Wang Sh.-Q. et al.** New principle formula of optical triangulation displacement measurement based on light scattering from rough surface. *Proc. SPIE*, 1997, Vol. 2909, pp. 37–42.
15. **Shiou F.-J., Chen M.-J.** Intermittent process hybrid measurement system on the machining centre. *International Journal of Production Research*, 2003, Vol. 41, pp. 4403–4427.

ДЕМКИН Владимир Николаевич — доктор технических наук, профессор кафедры общей, теоретической физики и методов преподавания физики Рязанского государственного университета имени С.А. Есенина.

390027, г. Рязань, ул. Свободы, 46
demkin@snrg.ru

СТЕПАНОВ Владимир Анатольевич — доктор физико-математических наук, профессор, заведующий кафедрой общей, теоретической физики и методов преподавания физики Рязанского государственного университета имени С.А. Есенина.

390000, г. Рязань, ул. Свободы, 46
vl.stepanov@rsu.edu.ru

ШАДРИН Максим Владимирович — аспирант кафедры общей, теоретической физики и методов преподавания физики Рязанского государственного университета имени С.А. Есенина.

390026, г. Рязань, ул. Свободы, 46
m.shadrin@russia.ru

УДК 537.533.2

*А.Ю. Емельянов, П.Г. Габдуллин,
А.В. Архипов, Н.М. Гнучев*

МОРФОЛОГИЯ ПОВЕРХНОСТИ И ПОЛЕВАЯ ЭМИССИЯ УГЛЕРОДНЫХ ПЛЕНОК, ПОЛУЧЕННЫХ МЕТОДОМ МАГНЕТРОННОГО НАПЫЛЕНИЯ

*A.Yu. Emelyanov, P.G. Gabdullin,
A.V. Arkhipov, N.M. Gnuchev*

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia

SURFACE MORPHOLOGY AND FIELD EMISSION OF THE MAGNETRON DEPOSITED CARBON FILMS

Исследовано влияние температуры роста углеродных пленок на кремниевых подложках на морфологию их поверхности и уровень полевой эмиссии. Выявлен интервал температур роста, в котором образуются углеродные пленки, обладающие эмиссионной активностью.

АТОМНО-СИЛОВАЯ МИКРОСКОПИЯ, УГЛЕРОДНЫЕ ПЛЕНКИ, МАГНЕТРОННОЕ НАПЫЛЕНИЕ, МОРФОЛОГИЯ ПОВЕРХНОСТИ, ПОЛЕВАЯ ЭМИССИЯ.

The influence of growth temperature of carbon films on their surface morphology and field emission has been investigated. Growth temperature range, where carbon-on-silicon films display the emission activity was found.

ATOMIC FORCE MICROSCOPY, CARBON FILMS, MAGNETRON DEPOSITION, SURFACE MORPHOLOGY, FIELD EMISSION.

Известно, что углеродные тонкие пленки различных модификаций могут обладать высокой автоэлектронной эмиссионной активностью. Помимо этого, значения напряженности порогового электрического поля на 3 – 4 порядка меньше, чем для обычных острых металлических катодов [1–4]. Очевидно, что наблюдаемые физические свойства углеродных пленок определяются электронной структурой поверхности, образованной взаимодействием наноразмерного образования и поверхности объемного твердого тела, на котором оно вы-

ращено. В пользу этого говорит тот факт, что описанные особенности не являются специфическими для углеродных систем, а встречаются в эмиттерах, изготовленных из полупроводников, например на микрокристаллах CdS и In_2O_3 , пленках SiO_x [5]. Подобие между эмиссионными свойствами различных материалов дает основание предположить существование общего механизма, ответственного за вышеупомянутые аномальные свойства.

Такие свойства углеродных покрытий открывают возможности для создания каче-



ственно новых элементов вакуумной электроники и микроэлектроники с заданными повышенными характеристиками. Тем не менее, для эффективного использования этих пленок в промышленности необходимо определить связь технологических условий образования углеродных пленок с их эмиссионными параметрами. Условия их изготовления определяют степень однородности и фазовый состав, которые, в свою очередь, задают электронную структуру и морфологию поверхности пленок.

Объектами исследования служили углеродные пленки, осажденные при различных температурах на подложки из монокристалла кремния Si (100), легированного бором. Прослеживались изменения морфологии поверхности при увеличении температуры роста пленки и их взаимосвязь с полевой эмиссией электронов. Поверхность подложек по данным атомно-силового микроскопа (АСМ) была практически гладкой: величина характерных выступов составляла всего 2 нм. Это позволило исключить возможность значительного влияния фактора геометрического усиления поля.

Для приготовления образцов углеродных пленок использовался метод магнетронного напыления. Его отличительной особенностью является отсутствие в потоке осаждаемого вещества капельной фазы и микрочастиц а также относительно большая площадь однородного осаждения.

Применяемая в настоящей работе система магнетронного напыления тонких про-

водящих пленок — МАГ-2000С использует мишень как катод газового разряда. Графитовая мишень диаметром 49 мм и толщиной 3 мм являлась источником атомов углерода. Расстояние от мишени до подложки было примерно 140 мм; при этом диаметр пятна равномерного напыления, на границе которого спад толщины пленки составлял 20 %, достигал 100 мм. Под магнетроном, в окружности диаметром 50 мм, располагались образцы подложек. Среднее значение тока распыляющих ионов составляло 100 мА. Осаждение происходило в вакуумной камере, предварительно откачанной до давления 10^{-3} Па, после чего в нее напускался аргон, который постоянно протекал через систему откачки при давлении 10 – 12 Па.

Толщины осажденных пленок контролировались методом кварцевых весов. По изменению резонансной частоты кварцевого кристалла, в зависимости от массы осажденной на нем пленки, оценивалась усредненная по площади толщина, которая контролировалась и калибровалась с использованием АСМ NanoDSTtm компании «Pacific Nanotechnology». Полученное сечение профиля поверхности одного из образцов приведено на рис. 1. В качестве образца выбрана титановая пленка толщиной 25 нм, изготовленная методом магнетронного напыления.

Толщины углеродных пленок мы рассчитывали, исходя из установленной скорости осаждения (1,5 нм/мин) при ком-

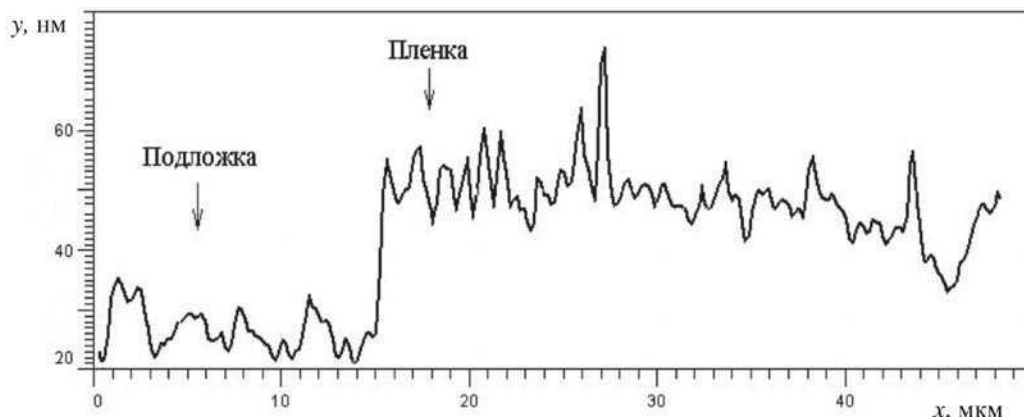


Рис. 1. Сечение профиля поверхности пленки титана, изготовленной системой магнетронного напыления (данные АСМ)

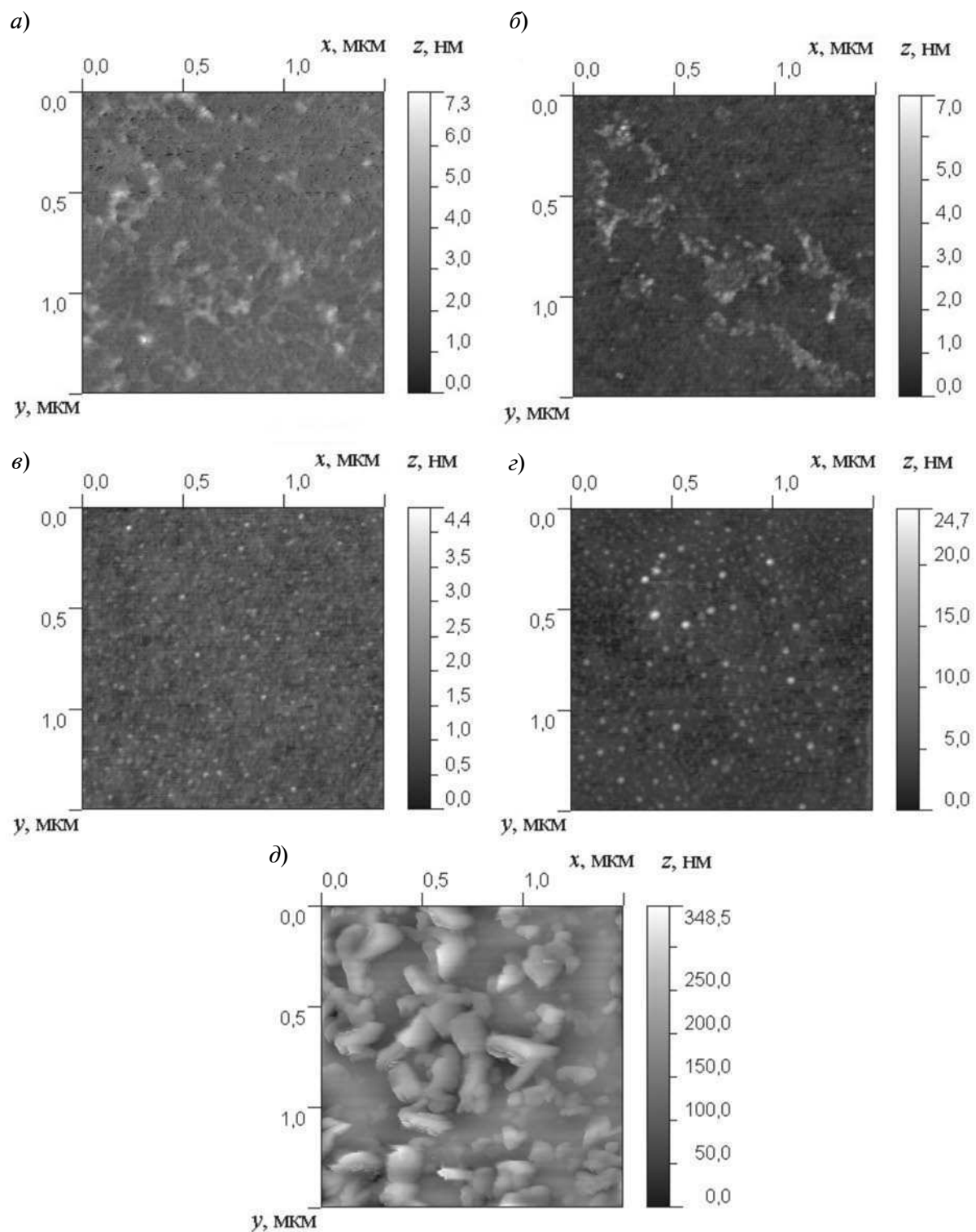


Рис. 2. АСМ-профили углеродных пленок, выращенных при температурах T , °C: 200 (a); 300 (б); 400 (в); 710 (г); 780 (д)



натной температуре для данной геометрии распылительной системы, что сопоставимо со значением, приведенным в работе [6]. Время осаждения пленок во всех случаях было одинаковым и составляло около 4 мин, при этом усредненная по площади подложки толщина углеродных пленок составляла 6 нм.

На рис. 2 представлены профили поверхностей углеродных пленок в масштабе $1,5 \times 1,5$ мкм, полученных с использованием ACM NanoDSTtm. Измерения показывают, что равномерное покрытие подложки островковой пленкой начинается с температуры роста 400 °С и заканчивается при 780 °С. Характерные размеры наблюдаемых островков увеличиваются по мере роста температуры: при 400 °С они составляют 10 – 20 нм, а при 700 – 760 °С составляют 20 – 50 нм.

Морфология поверхности пленки, изготовленной при температуре 780 °С, резко изменяется (см. рис. 2, з, д): углеродные частицы спекаются в более крупные образования с размерами 200 – 300 нм.

Один из образцов с равномерной островковой пленкой, изготовленный при температуре роста 700 °С, исследовался методом сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) с использованием мультимикроскопа СММ-2000ВАК (рис. 3). Профиль поверхности построен при давлении

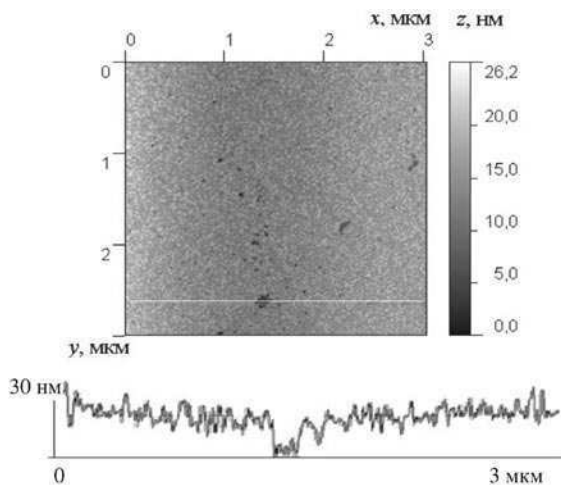


Рис. 3. СТМ-профиль и сечение поверхности углеродной пленки

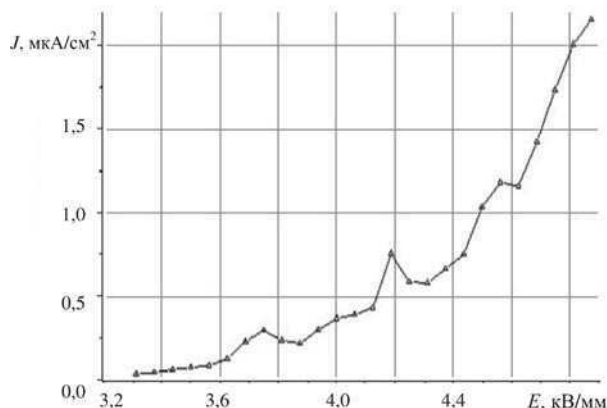


Рис. 4. Пример ВАХ эмиссионно-активных образцов (диапазон температур изготовления пленок 700 – 770 °С)

остаточных газов 10^{-5} Па при комнатной температуре и согласуется с результатами, полученными с помощью АСМ.

Для выявления взаимосвязи между морфологией поверхности полученных образцов и их эмиссионной активностью проводились измерения полевой эмиссии пленок, выращенных при различных температурах. Эмиссионный ток отбирался на торцевую поверхность анода цилиндрической формы диаметром 6 мм, расстояние между эмитирующей поверхностью и торцом анода составляло 0,6 мм. Измерения вольтамперных характеристик полевой эмиссии углеродных пленок проводились в вакуумной камере из нержавеющей стали при давлении остаточного газа 10^{-5} Па. В таблице представлены результаты измерений полевой эмиссии образцов, выращенных при различных температурах. Для эмиссионно-активных образцов указаны основные параметры ВАХ (рис. 4): значения плотности тока $J_{\max}$, близкие к максимальным, и соответствующие значения напряженности электрического поля $E_{\max}$.

Видно, что температура подложки в процессе осаждения на нее углерода оказывает критическим параметром, влияющим на возможность низковольтной эмиссии. Она проявляется у образцов углеродных пленок, полученных описанным выше методом, в пределах температуры роста 700 – 770 °С. Вне этого интервала значений температуры подложки эмиссионной активности пленок

Результаты измерений полевой эмиссии образцов,
изготовленных при различных температурах T_p

T_p , °C	300	400	700 – 770	780
$J_{\max}$, мкА/см ²	0	0	2,0	0
$E_{\max}$, кВ/мм	—	—	4,8 – 6,0	—

аморфного углерода не наблюдалось. С учетом погрешности определения температуры нижний и верхний пределы диапазона температур роста, при которых наблюдается полевая эмиссия, составляют 690 – 700 °C и 770 – 780 °C соответственно.

Как известно [7], низковольтная полевая эмиссия электронов обнаруживается у образцов углеродных пленок со смешанным фазовым составом: на поверхности должны сосуществовать алмазная и графитовая фазы. В указанном интервале температур роста, по-видимому, реализуются оптимальные для появления полевой эмиссии размеры поверхностных углеродных нанобразований и соотношение фаз с разным типом гибридизации атомов углерода. Исчезновение эмиссии для пленок с температурой роста выше 780 °C можно объяснить переходом sp^3 -гибридизированных атомов углерода в состояние sp^2 , что влечет за собой графитизацию аморфной пленки.

Следует отметить, что классическая теория полевой эмиссии, которая основывается на геометрическом факторе усиления

поля, не объясняет эмиссионную активность плоских эмиттеров. Необходимое усиление поля (в 10^3 – 10^4 раз) не может быть обеспечено в условиях, когда средняя высота выступов на поверхности пленки не превышает 30 нм (см. рис. 3).

Таким образом, рассмотренные особенности проявления полевой эмиссии представляют широкую область для исследования тонкопленочных структур с целью понимания физических принципов аномальной полевой эмиссии и ее взаимосвязи с морфологией поверхности углеродных слоев. Известный из литературы механизм полевой эмиссии из углеродных материалов при наличии наночастиц на поверхности [8 – 12] вполне можно применить к пленкам, изученным в данной работе. Вместе с тем, для выяснения вопроса о том, почему полевая эмиссия исследованных объектов наблюдается именно в найденном интервале температур роста, необходимы дальнейшие исследования электронной структуры углеродных пленок на кремнии.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Образцов, А.Н.** Автоэлектронная эмиссия в графитоподобных пленках [Текст] / А.Н. Образцов, И.Ю. Павловский, А.П. Волков // ЖТФ. – 2001. – Т. 71. – № 11. – С. 89–95.
2. **Gupta, S.** Investigations of the electron field emission properties and microstructure correlation in sulfur-incorporated nanocrystalline carbon thin films [Text] / S. Gupta, B.R. Weiner, G. Morell // J. Appl. Phys. – 2002. – Vol. 91. – P. 1088–1097.
3. **Вейнгер, А.И.** Электрофизические исследования нанопористых углеродных материалов, приготовленных из порошков карбида кремния [Текст] / А.И. Вейнгер, Б.Д. Шанина, А.М. Данишевский [и др.] // ФТТ. – 2003. – Т. 45. – № 6. – С. 1141–1150.
4. **Бондаренко, В.Б.** Эмиссионные характеристики порошков из нанопористого углерода [Текст] / В.Б. Бондаренко, П.Г. Габдуллин, Н.М. Гнучев [и др.] // ЖТФ. – 2004. – Т. 74. – № 10. – С. 113–116.
5. **Баскин, Л.М.** Влияние дипольных структур на полевую эмиссию широкозонных полупроводниковых катодов [Текст] / Л.М. Баскин, П. Нейттаанмяки, Б.А. Пламеневский // ЖТФ. – 2010. – Т. 80. – № 12. – С. 86–89.
6. **Иванов-Омский, В.И.** Колебательная спектроскопия аморфного углерода [Текст] / В.И. Иванов-Омский, Т.К. Звонарева, Г.С. Фролова // Физика и техника полупроводников. – 2008. – Т. 42. – № 9. – С. 1131–1134.
7. **Robertson, J.** Amorphous carbon cathodes for field emission display [Text] / J. Robertson // Thin Solid Films. – 1997. – Vol. 296. – № 1. – P. 61–65.



8. **Архипов, А.В.** Роль наночастиц в полевой эмиссии электронов из углеродных наноматериалов [Текст] / А.В. Архипов, Н.М. Гнучев, С.И. Крель // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. – 2012. – № 4 (158). – С. 98–103.

9. **Arkhipov, A.V.** Field-induced electron emission from graphitic nano-island films at silicon substrates [Text] / A.V. Arkhipov, P.G. Gabdullin, S.I. Krel [et al.] // *Fullerenes, Nanotubes, and Carbon Nanostructures*. – 2012. – Vol. 20. – P. 468–472.

10. **Arkhipov, A.V.** «Fine structure» of emission I-V characteristics of nanodispersed films [Text]

/ A.V. Arkhipov, P.G. Gabdullin // *Fullerenes, Nanotubes, and Carbon Nanostructures*. – 2011. – Vol. 19. – P. 81–85.

11. **Arkhipov, A.V.** On possible structure of field-induced electron emission centers of nanoporous carbon [Text] / A.V. Arkhipov, P.G. Gabdullin, M.V. Mishin // *Fullerenes, Nanotubes, and Carbon Nanostructures*. – 2011. – Vol. 19. – P. 86–91.

12. **Arkhipov, A.V.** Interpretation of dynamic and DC field-emission characteristics of nanocarbons in terms of two-stage emission model [Text] / A.V. Arkhipov, M.V. Mishin // *Fullerenes, Nanotubes, and Carbon Nanostructures*. – 2011. – Vol. 19. – P. 75–80.

REFERENCES

1. **Obraztsov A.N., Pavlovskij I.Yu., Volkov A.P.** Avtojelektronnaja jemissija v grafitopodobnyh plenках. *Technical Physics*, 2001, Vol. 71, № 11, pp. 89–95. (rus)

2. **Gupta S., Weiner B.R., Morell G.** Investigations of the electron field emission properties and microstructure correlation in sulfur-incorporated nanocrystalline carbon thin films. *J. Appl. Phys.*, 2002, Vol. 91, pp. 1088–1097.

3. **Vejnger A.I., Shanina B.D., Danishevskij A.M., Popov V.V., Gordeev S.K., Grechinskaja A.V.** Jelektrofizicheskie issledovanija nanoporistyh uglerodnyh materialov, prigotovlennyh iz poroshkov karbida kremnija. *FTT*, 2003, Vol. 45, № 6, pp. 1141–1150. (rus)

4. **Bondarenko V.B., Gabdullin P.G., Gnuchev N.M., Davydov S.N., Korablev V.V., Kravchik A.E., Sokolov V.V.** Jemissionnye harakteristiki poroshkov iz nanoporistogo ugleroda. *Technical Physics*, 2004, Vol. 74, № 10, pp. 113–116. (rus)

5. **Baskin L.M., Nejttanmjaki P., Plamenevskij B.A.** Vlijanie dipol'nyh struktur na polevuju jemissiju shirokozonnih poluprovodnikovyh katodov. *Technical Physics*, 2010, Vol. 80, № 12, pp. 86–89. (rus)

6. **Ivanov-Omskij V.I., Zvonareva T.K., Frolova G.S.** Kolebatel'naja spektroskopija amorfnogo ugleroda. *Fizika i tehnika poluprovodnikov*, 2008, Vol. 42, № 9, pp. 1131–1134. (rus)

7. **Robertson J.** Amorphous carbon cathodes for field emission display. *Thin Solid Films*, 1997, Vol. 296, № 1, pp. 61–65.

8. **Arkhipov A.V., Gnuchev N.M., Krel S.I.** Rol' nanochastich v polevoj jemissii jelektronov iz uglerodnyh nanomaterialov. St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics, 2012, № 4 (158), pp. 98–103. (rus)

9. **Arkhipov A.V., Gabdullin P.G., Krel S.I., Mishin M.V., Shakhmin A.L., Gordeev S.K., Korchagina S.B.** Field-induced electron emission from graphitic nano-island films at silicon substrates. *Fullerenes, Nanotubes, and Carbon Nanostructures*, 2012, Vol. 20, pp. 468–472.

10. **Arkhipov A.V., Gabdullin P.G.** «Fine structure» of emission I-V characteristics of nanodispersed films. *Fullerenes, Nanotubes, and Carbon Nanostructures*, 2011, Vol. 19, pp. 81–85.

11. **Arkhipov A.V., Gabdullin P.G., Mishin M.V.** On possible structure of field-induced electron emission centers of nanoporous carbon. *Fullerenes, Nanotubes, and Carbon Nanostructures*, 2011, Vol. 19, pp. 86–91.

12. **Arkhipov A.V., Mishin M.V.** Interpretation of dynamic and DC field-emission characteristics of nanocarbons in terms of two-stage emission model. *Fullerenes, Nanotubes, and Carbon Nanostructures*, 2011, Vol. 19, pp. 75–80.

ЕМЕЛЬЯНОВ Алексей Юрьевич – аспирант кафедры физической электроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
emelyanov000@gmail.com

ГАБДУЛЛИН Павел Гарифович – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физической электроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
pavel-gabdullin@yandex.ru

АРХИПОВ Александр Викторович — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физической электроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

arkhipov@rphf.spbstu.ru

ГНУЧЕВ Николай Михайлович — доктор физико-математических наук, профессор кафедры физической электроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

nmg@rphf.spbstu.ru

УДК 53.083.91: 535.3

Д.В. Кизеветтер, Н.В. Ильин

**РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ИНТЕНСИВНОСТИ СВЕТА
ВБЛИЗИ ВЫХОДНОГО ТОРЦА ВОЛОКОННОГО СВЕТОВОДА
ПРИ НАЛИЧИИ ОПТИЧЕСКИХ ВИХРЕЙ**

D.V. Kieseewetter, N.V. Ilyin

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

**THE INTENSITY DISTRIBUTIONS OF THE LIGHT NEAR THE OUTPUT END
OF THE OPTICAL FIBER IN THE PRESENCE OF OPTICAL VORTICES**

Экспериментально подтвержден эффект вращения спеклов излучения многомодовых волоконных световодов при перемещении плоскости наблюдения вдоль оси волокна вблизи поверхности выходного торца. Путем расчета функции взаимной корреляции распределений интенсивности определена угловая скорость вращения спеклов.

ВОЛОКОННЫЙ СВЕТОВОД, ОПТИЧЕСКИЙ ВИХРЬ, СПЕКЛ, РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ИНТЕНСИВНОСТИ СВЕТА, ВЫХОДНОЙ ТОРЕЦ СВЕТОВОДА.

The effect of rotation of speckle of multimode optical fiber has been confirmed experimentally when moving plane observations along the fiber axis near the surface of the output end. Using the calculation of cross correlation function between the distributions of intensity the angular speed of rotation of speckle was determined.

OPTICAL FIBER, OPTICAL VORTEX, SPECKLE, INTENSITY DISTRIBUTION OF LIGHT, OUTPUT END OF OPTICAL FIBER.

Технические характеристики множества волоконно-оптических устройств на основе многомодовых волоконных световодов (ВС) в значительной степени зависят от распределения интенсивности оптического излучения, выходящего из оптического волокна. При использовании когерентного излучения на выходе многомодового ВС возникает пятнистая картина интерференции излучения множества волноводных мод, называемая спекл-структурой (СПС), а сами пятна — спеклами. От параметров СПС зависят, в частности, параметры ВО

датчиков, характеристики шума в приемных устройствах, эксплуатационные характеристики устройств для оптической манипуляции микрочастицами. Для волноводных мод с плоским волновым фронтом, которые далее по тексту будут называться обычными, основные свойства спекл-структур изучены довольно хорошо. Однако в волоконных световодах могут распространяться также оптические вихри. Свойства спекл-структур, сформированных оптическими вихрями, отличаются от СПС, образованных обычными волноводными модами

[1, 2]. Это влияет, например, на отношение сигнал/шум при пространственной фильтрации излучения [3]. Поэтому исследования распределений интенсивности излучения вблизи выходного торца световодов актуальны и могут иметь прикладное значение.

Одним из свойств спекл-структуры, формируемой излучением оптических вихрей волоконного световода, является ее вращение при перемещении плоскости наблюдения вблизи выходного торца. Экспериментально этот эффект был обнаружен в градиентных волоконных световодах [4]; методом численного моделирования был установлен факт вращения интерференционной картины, формируемой излучением оптического вихря и волноводной модой с плоским волновым фронтом, вблизи поверхности выходного торца [5]. Как будет показано ниже, эффект вращения СПС при перемещении плоскости наблюдения имеет место и в ВС со ступенчатым профилем показателя преломления.

Для создания оптических вихрей в волоконных световодах использовалась экспериментальная установка, описанная в работе [4]. Сущность использованного метода возбуждения оптических вихрей заключается в освещении торца ВС сфокусированным лазерным пучком, центр которого смещен относительно оси световода на величину l_s , а оптическая ось пучка наклонена относительно оси ВС на угол γ_s в одной из плоскостей (рис. 1) и на угол γ_a в другой плоскости. Согласно терминологии лучевого приближения, использованное устройство создавало в волоконном световоде косые лучи [6, 7]. Исследования проводились на ВС (длина от 0,5 до 5 м) со ступенчатым профилем показателя преломления, состоящим из кварцевой сердцевины (диаметры 200 и 1000 мкм) и полимерной отражающей оболочки («кварц-полимер»). В качестве источников излучения применялись гелий-неоновый и твердотельный лазеры с рабочими длинами волн 633 и 532 нм соответственно. Регистрация распределений интенсивности выходящего излучения производилась матричной телевизионной камерой с фокусирующим микрообъективом,

расположенной на микрометрической подвижке.

В качестве примера на рис. 2,а приведено экспериментально полученное распределение интенсивности выходящего излучения в плоскости, перпендикулярной оси ВС, на рис. 2,б – распределения интенсивности $I_1(\varphi)$ и $I_2(\varphi)$ от азимутального угла при постоянном значении радиуса $r = \text{const}$. График 2 получен для изображения, зарегистрированного при смещении плоскости наблюдения вдоль оси ВС на 50 мкм ($I_2(\varphi)$). Представленные экспериментальные данные получены на ВС длиной 3 м с диаметром сердцевины 1000 мкм; длина волны излучения составляла 633 нм; диаметр сфокусированного лазерного пучка – приблизительно 10 мкм, углы наклона γ_s, γ_a составляли 5° и 10° соответственно, а смещение центра пучка l_s – 400 мкм. При малом расстоянии ΔL между плоскостями наблюдения радиусы окружностей r_1 и r_2 , по которым рассчитываются зависимости $I_1(\varphi)$ и $I_2(\varphi)$, а также функцию взаимной корреляции (ФВК) указанных распределе-

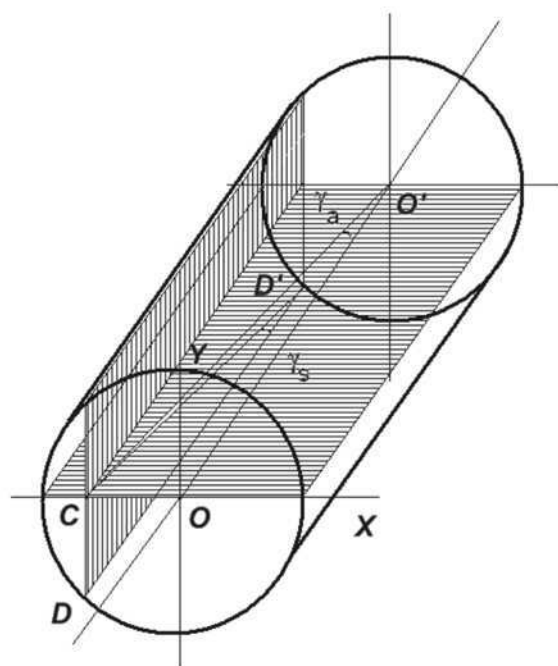


Рис. 1. Геометрия лазерного пучка относительно оси волоконного световода: C – центр лазерного пучка, OCO' , CDD' – плоскости, в которых лежат углы γ_a и γ_s соответственно

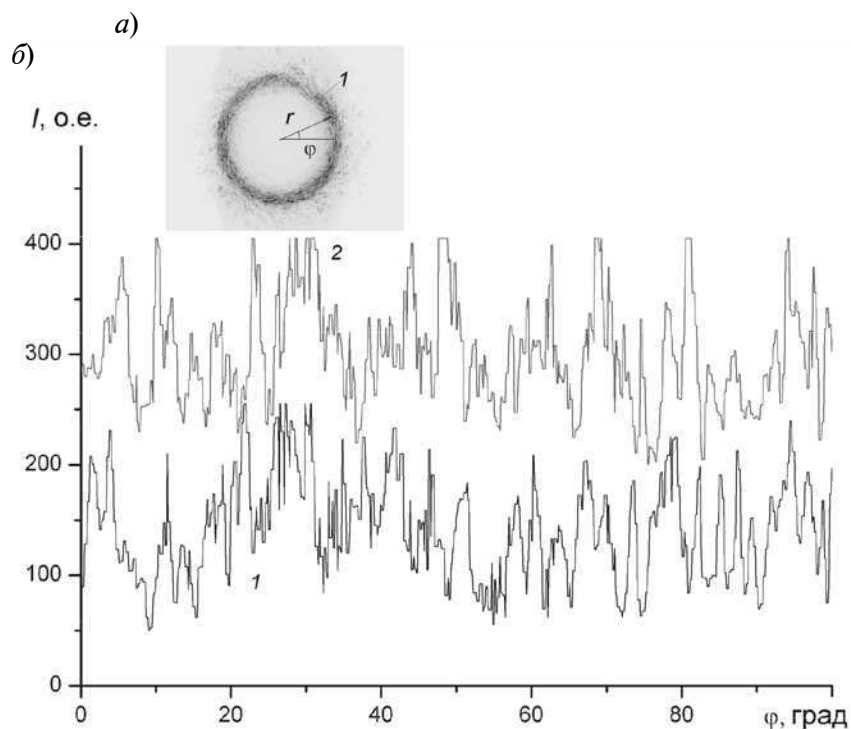


Рис. 2. Распределения интенсивности света на изображениях лазерного пучка, выходящего из волоконного световода, в плоскости, перпендикулярной оси: *a* – инвертированное изображение пучка 1; *б* – зависимость интенсивностей пучков 1 и 2 от азимутального угла при постоянном значении расстояния r до оси световода. Изображение 2 получено после перемещения плоскости наблюдения на $\Delta L = 50$ мкм вдоль оси волокна (график 2 смещен по вертикали относительно графика 1)

ний можно полагать одинаковыми. Однако в связи с тем, что при перемещении плоскости наблюдения в свободном пространстве вдоль оси ВС изменяются линейные размеры распределений, в общем случае, ФВК следует рассчитывать для различных значений расстояния до оси ВС (r_1 и r_2). Пример ФВК для указанных распределений, а также автокорреляционная функция (АКФ) для $I_1(\varphi)$ приведены на рис. 3. Эллиптичность зерен спеклов (см. рис. 2, *a*) подтверждает наличие группы оптических вихрей, имеющих одинаковое направления волнового фронта [1].

Смещение на величину $\Delta\varphi \neq 0$ максимума ФВК азимутальных распределений интенсивности (см. рис. 3), измеренных в плоскостях, смещенных вдоль оси друг относительно друга, характеризует поворот спекл-картины на величину $\Delta\varphi$. Поворот спекл-картины при перемещении плоскости наблюдения можно наблюдать визу-

ально на экране монитора. Смещение на угол $\Delta\varphi_{12}$ можно обнаружить и при визуальном анализе зависимостей $I_1(\varphi)$ и $I_2(\varphi)$. Но определить точное значение $\Delta\varphi_{12}$ в этом случае затруднительно. Расчетное значение $\Delta\varphi$, соответствующее максимальному значению ФВК (см. рис. 3), составило приблизительно 1,6 град, а угловая скорость вращения $\Delta\varphi/\Delta L = 32$ град/мм. Проведенные исследования показали, что вблизи выходного торца ВС величина $\Delta\varphi$ увеличивается примерно пропорционально расстоянию между плоскостями наблюдения ΔL , а в дальней зоне дифракции указанный эффект практически отсутствует. Значение $\Delta\varphi$ зависит, в основном, от условий ввода излучения. Однако условия распространения излучения в световоде также влияют на величину $\Delta\varphi$, в частности, угловые скорости вращения для различных волноводных мод могут различаться. Указанные эффекты имели место при всех использованных

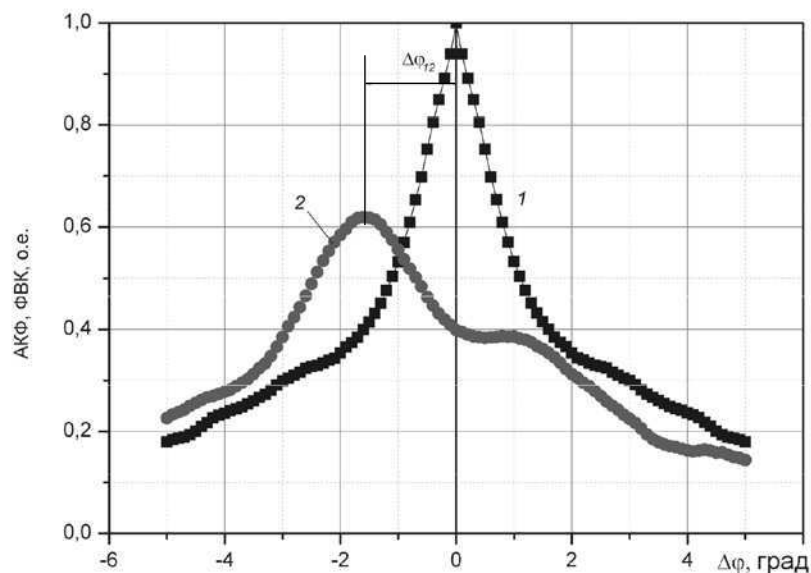


Рис. 3. Автокорреляционная функция (АКФ) (1) распределения интенсивности света на изображении 1 (см. рис. 2, а) и функция взаимной корреляции (ФВК) (2) изображений 1 и 2 (см. рис. 2, б).
Значение расстояния r постоянно

длинах волн излучения и для всех волоконных световодов.

Уменьшение максимального значения ФВК, по сравнению с максимумом АКФ, обусловлено трансформацией спекл-структур, называемой кипением спеклов. Другими словами, помимо поворота спекл-структуры происходят также хаотическое перемещение спеклов и изменение их формы. При этом чем больше смещение ΔL , тем меньше величина максимального значения ФВК.

На фазу оптических вихрей, распростра-

няющихся по световоду, влияют изгибы, сжатия, удлинения и другие воздействия, так же как и для обычных волноводных мод. В частности, известные факты высокой чувствительности фазы оптических вихрей к изменению температуры волоконного световода (см., например, работу [8]). Следовательно, различные свойства оптических вихрей могут иметь в будущем практическое применение для создания новых типов волоконно-оптических датчиков физических величин.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кизеветтер, Д.В. Численное моделирование спекл-структуры, образованной излучением оптических вихрей многомодового волоконного световода [Текст] / Д.В. Кизеветтер // Квантовая электроника. — 2008. — Т. 38. — № 2. — С. 172–180.
2. Кизеветтер, Д.В. Характеристики спекл-структур излучения волоконных световодов [Текст] / Д.В. Кизеветтер // Научно-технические ведомости СПбГПУ. — 2008. — № 3. — С. 72–80.
3. Кизеветтер, Д.В. Влияние дефектов торцевых поверхностей световода на параметры модового шума при наличии оптических вихрей [Текст] / Д.В. Кизеветтер // Оптический журнал. — 2013. — Т. 80. — № 1. — С. 10–16.
4. Ильин, Н.В. Метод возбуждения оптических вихрей в градиентных волоконных световодах [Текст] / Н.В. Ильин, Д.В. Кизеветтер // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2010. — № 2 (98). — С. 96–102.
5. Ильин, Н.В. Численное моделирование распределения интенсивности света вблизи выходного торца волоконного световода при наличии [Текст] / Н.В. Ильин, Д.В. Кизеветтер // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2013. — № 1 (165). — С. 108–113.
6. Снайдер, А. Теория оптических волноводов [Текст] / А. Снайдер, Дж. Лав; Пер. с англ.



— М.: Изд-во «Радио и связь», 1987. — 656 с.

7. Унгер, Х.Г. Планарные и волоконные оптические волноводы [Текст] / Х.Г. Унгер; Пер. с англ. — М.: Изд-во «Мир», 1980. — 656 с.

8. Борисов, В.И. Спиральная интерферен-

ционная картина светового пучка, прошедшего многомодовое оптическое волокно [Текст] / В.И. Борисов, В.И. Лебедев, А.Н. Куканов // Письма в ЖТФ. — 1984. — Т. 10. — № 5. — С. 287–290.

REFERENCES

1. Kieseewetter D.V. Numerical simulation of a speckle pattern formed by radiation of optical vortices in a multimode optical fibre. *Quantum Electron*, 2008, № 38(2), pp. 172–180. (rus)

2. Kieseewetter D.V. Kharakteristiki spekl-struktur izlucheniia volokonnykh svetovodov. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal*, 2008, № 3, pp. 72–80. (rus)

3. Kieseewetter D.V. Vliianie defektov tortsevykh poverkhnostei svetovoda na parametry modovogo shuma pri nalichii opticheskikh vikhrei. *Journal of Optical Technology*, 2013, Vol. 80, № 1, pp. 10–16. (rus)

4. Il'in N.V., Kieseewetter D.V. Method of optical vortices excitation in graded index optical fibers. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2010, № 2 (98),

pp. 96–102. (rus)

5. Il'in N.V., Kieseewetter D.V. The numerical simulation of the light intensity distribution in proximity to the output end of optical fiber given the optical vortices. *St.-Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2013, № 1 (165), pp. 108–113. (rus)

6. Snyder A.W., Love J. Optical Waveguide Theory. Moscow, Izd-vo «Radio i sviaz'», 1987, 656 p. (rus)

7. Unger, H.G. Planar Optical Waveguides and Fibres. — Moscow: Izd-vo «Mir», 1980, 656 p. (rus)

8. Borisov V.I., Lebedev V.I., Kukanov A.N. Spiral'naia interferentsionnaia kartina svetovogo puchka, proshedshego mnogomodovoe opticheskoe volokno. *JETP Letters*, 1984, Vol. 10, № 5, pp. 287–290. (rus)

КИЗЕВЕТТЕР Дмитрий Владимирович — доктор физико-математических наук, доцент кафедры техники высоких напряжений, электроизоляционной и кабельной техники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
dmitrykieseewetter@gmail.com

ИЛЬИН Никита Владимирович — аспирант кафедры техники высоких напряжений, электроизоляционной и кабельной техники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
nv.ilyn@gmail.com.

УДК 535:621.373.8:6

А.В. Князьков

ПОЛЯРИЗАЦИОННО-ОПТИЧЕСКАЯ МОДУЛЯЦИЯ СВЕТА

A.V. Kniazkov

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia

POLARIZE-OPTICAL LIGHT MODULATION

В статье проводится анализ поляризационно-оптической модуляции (ПОМ) светового потока электрооптическими (ЭО) средами. Рассмотрены случаи ПОМ без аperiодической модуляции и с модуляцией спектра. Показано, что электрооптическая модуляция происходит с преобразованием спектра. Получены зависимости контрастности ПОМ от ширины спектра излучения в случаях как одной ЭО среды, так и пропускания модулируемого излучения ПОМ для двух ЭО сред.

ПОЛЯРИЗАЦИОННО-ОПТИЧЕСКАЯ МОДУЛЯЦИЯ, ЭЛЕКТРООПТИЧЕСКИЕ СРЕДЫ, ПРЕОБРАЗОВАНИЕ СПЕКТРА, КОНТРАСТНОСТЬ МОДУЛЯЦИИ.

An analysis of polarize-optical modulation (POM) of the light flow by electro-optical (EO) medium has been performed. POM without aperiodic transformation and with the transformation of the spectrum was reviewed. It was shown that the electro-optical modulation occurred with the transformation of the spectrum. The dependence of the contrast ratio POM of the width of the emission spectrum in the case of one EO medium and the optical transmission of the modulated radiation POM for the two EO mediums were obtained.

POLARIZE-OPTICAL MODULATION, ELECTRO-OPTICAL MEDIUM, SPECTRUM CONVERSION, CONTRAST MODULATION.

Двулучепреломляющие электрооптические (ЭО) материалы широко используются для фазовой поляризационной модуляции света. Преобразование фазовой поляризационной модуляции света в амплитудную осуществляется поляризационно-оптическими методами (ПОМ) в поляризационно-оптической схеме (ПОС), в которой ЭО материал помещается между поляризатором и анализатором. ПОС хорошо известна и характеризуется высокой эффективностью модуляции [1, 2]. В ПОМ коллимированное излучение источника I проходит через поляризатор 2, ориентация которого выбирается относительно оптической оси ЭО материала так, чтобы через ЭО материал распространялись две ортогонально поляризованные световые волны равной интенсивности (рис. 1). Эти волны, в силу разных значений показателя преломления $n_{o,e}$ для обыкновенной (o) и необыкновенной (e) волн, приобретают раз-

ные фазовые задержки, зависящие от расстояния прохождения l в ЭО среде. В результате на выходе после ЭО материала свет приобретает эллиптическую поляризацию. Для преобразования этой фазовой поляризационной модуляции в амплитудную служит анализатор 4. Регистрация амплитудной модуляции осуществляется фоторегистрирующим устройством 5. Наиболее простые выражения преобразования фазовой поляризационной модуляции в амплитудную модуляцию получены для оптимальной ориентации оптической оси ЭО материала относительно осей поляризатора-анализатора для модуляции излучения одночастотного лазерного источника с длиной волны λ_0 [1–3]. Так, максимальное изменение интенсивности света I , прошедшего поляризационно-оптическую схему со скрещенным положением осей анализатор-поляризатор описывается следующим выражением:

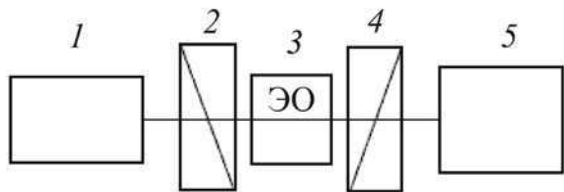


Рис. 1. Поляризационно-оптическая схема (ПОС) преобразования фазовой поляризационной модуляции света в амплитудную:

1 — источник излучения; 2 — поляризатор; 3 — электрооптический (ЭО) материал; 4 — анализатор; 5 — фоторегистрирующее устройство

$$I_{\times} = I_0 \sin^2 \left(\frac{\pi(\Delta n_0 + \delta \Delta n(E))}{\lambda_0} l \right) = I_0 \sin^2(\varphi_0 + \varphi(E)), \quad (1)$$

а для параллельной ориентации осей анализатор-поляризатор —

$$I_{\parallel} = I_0 \cos^2 \left(\frac{\pi(\Delta n_0 + \delta \Delta n(E))}{\lambda_0} l \right) = I_0 \cos^2(\varphi_0 + \varphi(E)), \quad (2)$$

где Δn_0 — естественное двулучепреломление; $\delta \Delta n(E)$ — величина индуцированного двулучепреломления; φ_0 , $\varphi(E)$ — соответственно, естественная и индуцированная фазовые задержки; E — величина управляющего электрического поля.

Глубина амплитудной модуляции определяется при изменении управляющего поля от нуля до значения, соответствующего первому экстремуму выходной интенсивности света. Выражения (1), (2) показывают, что ЭО среды с естественным двулучепреломлением имеют меньшую глубину модуляции ввиду наличия начального двулучепреломления. Анализ ЭО модуляции ПОМ для источников излучения с конечным спектром длин волн намного сложнее. Настоящая работа посвящена рассмотрению ЭО модуляции светового потока ЭО средами, не обладающими и обладающими естественным двулучепреломлением, для общего случая излучения с конечным непрерывным спектром.

Будет показано, что в силу конечного частотного спектра реальных источников излучения экстремумы интенсивности ПОС не будут достигать своих максималь-

ных (минимальных) значений. С другой стороны, естественное двулучепреломление может вызвать сильное спектральное преобразование модулируемого излучения прошедшего ПОС при достаточной толщине ЭО среды. Все это снижает глубину ЭО модуляции света и изменяет спектральный состав излучения.

Рассмотрим вначале случай отсутствия сильного спектрального преобразования, вызванного естественным двулучепреломлением Δn_0 ЭО среды, или большим расстоянием l прохождения модулируемым излучением. В этом случае максимальная глубина модуляции излучения для ПОС со скрещенными/параллельными осями поляризатор-анализатор определяется изменением индуцированного преломления электрооптической среды $\delta \Delta n(E)$, соответствующим изменению фазы $\varphi(E)$ на $\pi/2$, но это выполняется только для определенной длины волны λ_0 . Для источников света с конечным частотным спектром излучения или, другими словами, для источников с конечным диапазоном излучаемых длин волн $\Delta \lambda = \lambda_2 - \lambda_1$ условие максимальной глубины модуляции будет выполняться только для одной длины волны, а для всех остальных спектральных компонент — нет, что ведет к снижению максимальной глубины модуляции всего излучения. Амплитудный спектральный состав излучения описывается спектральной плотностью

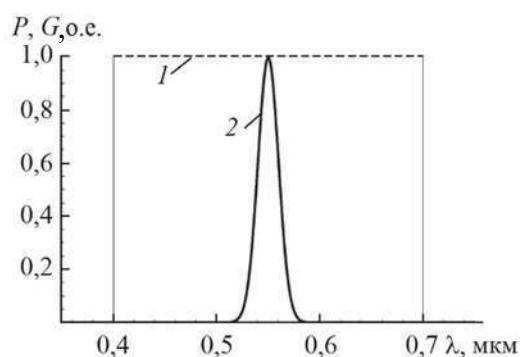


Рис. 2. Спектры входного излучения источника: 1 — прямоугольный ($\lambda_1 = 0,4$ мкм; $\lambda_2 = 0,7$ мкм); 2 — гауссовский ($\lambda_0 = 0,55$ мкм; $\lambda_1 = 0,52$ мкм; $\lambda_2 = 0,58$ мкм). $P(\lambda)$, $G(\lambda)$ — соответствующие спектральные плотности (1, 2)

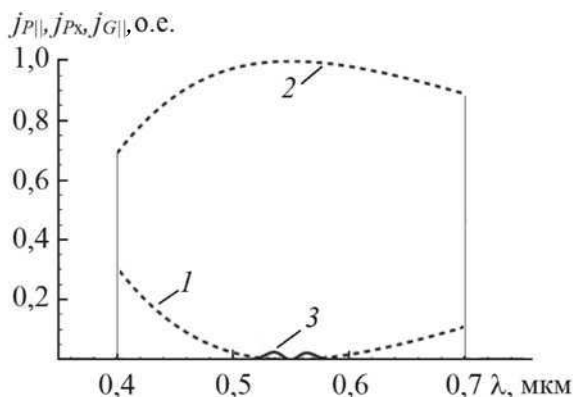


Рис. 3. Спектры излучения источника на выходе ПОС с параллельной (1,3) и скрещенной (2) ориентациями осей анализатора-поляризатора для входных прямоугольного (1, 2) и гауссовского (3) спектров;
 $j_{P\parallel}(\lambda)$, $j_{P\perp}(\lambda)$, $j_{G\parallel}(\lambda)$ – спектральные плотности, соответствующие 1, 2, 3

стью. Мы будем рассматривать два случая: прямоугольный спектр со спектральной плотностью $P(\lambda)$ и гауссовский спектр со спектральной плотностью $G(\lambda)$. Глубину модуляции ПОМ можно оценить по контрастности K – отношению максимальной к минимальной интенсивности прошедшего ПОС излучения ($K = I_{\max}/I_{\min}$), соответствующего ПОС с параллельным и скрещенным состоянием осей анализатора-поляризатор. Начальная интенсивность излучения, прошедшего ПОС с параллельной ориентацией поляризатор-анализатор, имеет максимальное значение $I_{\max}$. Это значение определяется интегрированием спектральной плотности излучения $P(\lambda)$, $G(\lambda)$ по всей ширине спектра. Соответственно, начальная минимальная интенсивность ПОС_х будет достигаться для скрещенного положения осей поляризатор-анализатор, а ее минимальное значение будет пропорционально ширине спектра: $I_{\min} \sim \Delta\lambda$ (нулевое значение выходной интенсивности достигается только для одной длины волны λ_0).

Рассмотрим прохождение ПОС излучением белого света с прямоугольной спектральной плотностью $P(\lambda)$ с граничными длинами волн $\lambda_1 = 0,4$ мкм, $\lambda_2 = 0,7$ мкм и узкополосным излучением с гауссовским спектром

$$G(\lambda) = \exp[-(\lambda - \lambda_0)^2/(2\sigma^2)]$$

со средней длиной волны $\lambda_0 = 0,55$ мкм и стандартным отклонением $\sigma = 0,01$ мкм (рис. 2).

Плотность спектра излучения $j_{P,G}(\lambda)$ на выходе ПОС с параллельной ориентацией анализатора-поляризатора для прямоугольного распределения спектра будет выражаться следующим образом:

$$\begin{cases} j_P = 0, & \lambda < 0,4 \text{ мкм;} \\ j_P = j_0 \cos^2\left(\frac{\pi \cdot \delta n \cdot l}{\lambda}\right), & 0,4 < \lambda < 0,7 \text{ мкм;} \\ j_P = 0, & \lambda > 0,7 \text{ мкм;} \end{cases}$$

а для гауссовского спектра (рис. 3):

$$j_G = j_0 \cos^2\left(\frac{\pi \cdot \delta n \cdot l}{\lambda}\right) G(\lambda). \quad (3)$$

Выходная интенсивность света, соответствующая индуцированному двулучепреломлению $\delta n(E)$ при достижении первого экстремума, находится интегрированием по всем длинам волн:

$$I_{out} = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} j_{P,G}(\lambda) d\lambda. \quad (4)$$

Граничные значения длин волн λ_1 , λ_2 в случае гауссовского спектра определялись по уровню 0,01. Контрастность K модуляции белого излучения с прямоугольным спектром составляла $K = 14$, а для узкополосного излучения с гауссовским спектром – $K = 1250$. Глубина модуляции белого

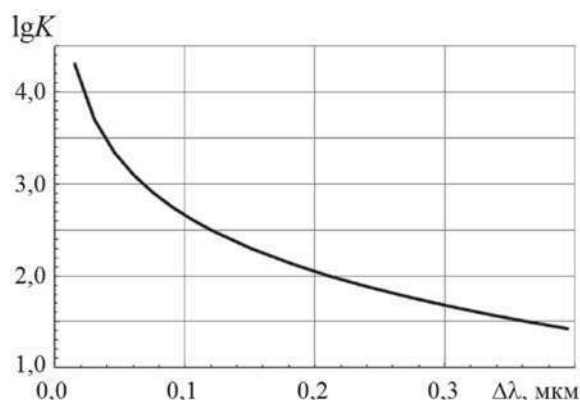


Рис. 4. Зависимость логарифма контрастности ЭО модуляции излучения с гауссовским спектром от ширины спектра

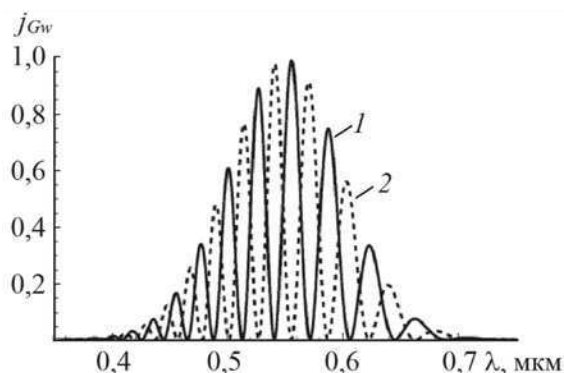


Рис. 5. Изменение спектра излучения белого света на выходе ПОС $j_{Gw}(\lambda)$ для входного излучения белого света с гауссовским распределением спектральной плотности после прохождения ЭО среды длиной 1 мм с $\Delta n = \Delta n_0 = 0,01$ (1) и с $\Delta n = \Delta n_0 + \delta\Delta n(E)$ (2)

спектра, оцениваемая по видности

$$V = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min}),$$

составляла 87 %.

Из рис. 3 видно, что поляризационно-оптическая модуляция существенно преобразует исходный спектр излучения, (это также было показано в работе [4]). Особенно такое преобразование заметно для ЭО сред с естественным двулучепреломлением или с большим расстоянием l прохождения модулируемого излучения. Зависимость логарифма контрастности модуляции от ширины гауссовского спектра излучения показана на рис. 4.

Эффект преобразования спектра модулируемого излучения в ПОМ ярко проявляется в ЭО средах с естественным двулучепреломлением при модуляции ши-

рокополосного излучения. Представим излучение белого света гауссовским спектром вида

$$G_w(\lambda) = \exp[-(\lambda - \lambda_0)^2 / (2\sigma^2)] G_w(\lambda)$$

со средней длиной волны $\lambda_0 = 0,55$ мкм и стандартным отклонением $\sigma = 0,05$ мкм. Спектральная плотность на выходе ПОС будет описываться выражением:

$$j_{Gw} = \frac{G_w(\lambda)}{2} \left(1 + \cos \left(\frac{2\pi \cdot \Delta n_0}{\lambda} l \right) \right). \quad (5)$$

Естественное двулучепреломление ЭО среды Δn_0 может вызвать сильную аперiodическую модуляцию спектра белого излучения при прохождении ЭО среды длиной всего лишь $l = 1$ мм ($\Delta n_0 = 0,01$) (рис. 5). Заметим, что интенсивность прошедшего света ПОС, вычисленная по формуле (4), уменьшается почти в два раза, при этом около 50 % теряется из-за спектральной модуляции. Если такое спектрально-модулированное широкополосное излучение направить на последующую ПОС с анализатором 6 и с ЭО материалом 5 (рис. 6), в котором наряду с естественным двулучепреломлением Δn_0 индуцируется двулучепреломление $\delta\Delta n(E)$ и суммарное двулучепреломление равно

$$\Delta n = \Delta n_0 + \delta\Delta n(E),$$

то, изменяя его, можно сдвигать спектральную плотность (см. рис. 5), и тем самым модулировать прошедшее излучение по амплитуде. Глубина амплитудной модуляции света, прошедшего такую двойную ПОС, рассчитывается из зависимости выходной интенсивности от управляемого индуцированного двулучепреломления.

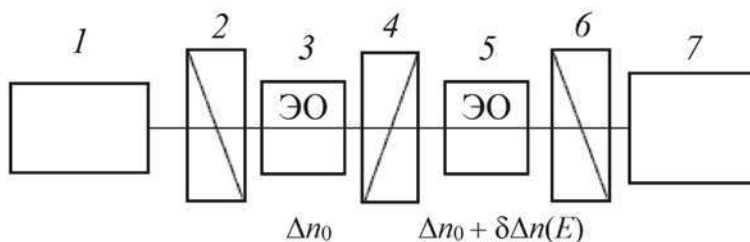


Рис. 6. Двойная поляризационно-оптическая схема с ЭО средами с естественным и индуцированным двулучепреломлением:
1 – источник излучения; 2 – поляризатор; 3 – ЭО материал с $\Delta n = \Delta n_0$;
4 – анализатор; 5 – ЭО материал с $\Delta n = \Delta n_0 + \delta\Delta n(E)$; 6 – анализатор;
7 – фоторегистрирующее устройство

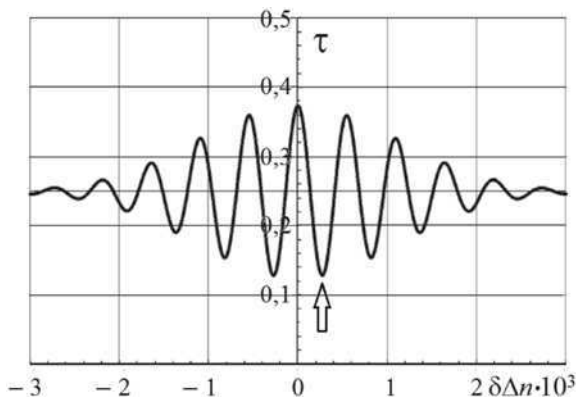


Рис. 7. Зависимость коэффициента пропускания двойной ПОС от величины наведенного преломления $\delta\Delta n$; для обеих ЭО сред $\Delta n_0 = 10^{-2}$, $l = 1$ мм; стрелкой показан первый минимум, соответствующий максимальной глубине модуляции

Интенсивность света после прохождения двойной ПОС определяется следующим выражением:

$$I_{out} = \frac{I_0}{4} \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} G_w(\lambda) \times \left(1 + \cos\left(\frac{2\pi \cdot \Delta n_0}{\lambda} l\right) \right) \times \left(1 + \cos\left(\frac{2\pi \cdot (\Delta n_0 + \delta\Delta n(E))}{\lambda} l\right) \right) d\lambda. \quad (6)$$

На рис. 7 приведена зависимость коэффициента пропускания анализируемой

системы от величины индуцированного преломления $\delta\Delta n(E)$ во второй ЭО среде, которая имеет такую же величину естественного двулучепреломления Δn_0 и толщину l , что и первая.

Величина максимальной глубины модуляции V , определяемая величинами двулучепреломления, ближайшими к нулевому значению $\delta\Delta n$ экстремумами коэффициента пропускания ПОС, рассчитанная по формуле

$$V = (\tau_{\max} - \tau_{\min}) / (\tau_{\max} + \tau_{\min}),$$

составляет 49 % при среднем пропускании 25 %.

Подобные модуляторы экспериментально исследовались в работах [5–7]. Если во второй ЭО среде отсутствует естественное двулучепреломление ($\Delta n_0 = 0$), то вторая ПОС ведет себя как обычный ЭО модулятор, и расчеты показывают, что максимальная глубина модуляции может достигать 77 %.

В заключение отметим, что поляризационно-оптическая модуляция широкополосного излучения всегда происходит с изменением спектра модулируемого излучения. Использование нескольких последовательно расположенных ПОС для амплитудной модуляции света путем управления спектром излучения снижает эффективность модуляции.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Мустель, Е.П. Методы модуляции и сканирования света [Текст] / Е.П. Мустель, В.Н. Парыгин. — М.: Наука, 1970. — 296 с.
2. Сонин, А.С. Электрооптические кристаллы [Текст] / А.С. Сонин, А.С. Василевская. — М.: Атомиздат, 1971. — 328 с.
3. Ярив, А. Оптические волны в кристаллах [Текст] / А. Ярив, П. Юх; пер. с англ. — М.: Мир, 1987. — 616 с.
4. Бережной, А.А. Широкоапертурный электрооптический модулятор немонахроматического света [Текст] / А.А. Бережной, О.А. Сеничкина // Оптический журнал. — 1994. — № 5. — С. 30–34.
5. Литвинова, М.Н. Электрооптическая модуляция и преобразование немонахроматического излучения в кристаллах ниобата лития [Текст] / М.Н. Литвинова. — Хабаровск: Изд-во ДВГУПС, 2007. — 80 с.
6. Литвинова, М.Н. Электрооптическая модуляция широкополосного излучения в кристалле ниобата лития [Текст] / М.Н. Литвинова, В.В. Криштоп, В.И. Строганов [и др.] // Изв. вузов. Приборостроение. — 2007. — Т. 80. — № 9. — С. 16–18.
7. Гончарова, П.С. Электрооптическое управление немонахроматическим светом в системе из двух анизотропных кристаллов [Текст] / П.С. Гончарова, В.В. Криштоп, А.В. Сюй [и др.] // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2012. — № 1 (141). — С. 82–86.
8. Лопатина, П.С. Электрооптическая модуляция широкополосного света с гауссовским



амплитудным распределением спектра [Текст] / П.С. Лопатина, В.В. Криштоп, В.И. Строганов [и др.] // Оптика и спектроскопия. — 2012. — Т. 113. — № 2. — С. 219–221.

REFERENCES

1. **Mustel' E.P., Parygin V.N.** Metody moduljacji i skanirvanija sveta. Moscow, Nauka, 1970, 296 p. (rus)

2. **Sonin A.S., Vasilevskaja A.S.** Elektroopticheskie kristally. —Moscow, Atomizdat, 1971, 328 p. (rus)

3. **Jariv A., Juh P.** Opticheskie volny v kristallah. —Moscow, Mir, 1987, 616 p. (rus)

4. **Berezhnoj A.A., Senichkina O.A.** Shirokoaperturnyj elektroopticheskiy moduljator nemonohromaticeskogo sveta. *Opticheskij zhurnal*, 1994, № 5, pp. 30–34. (rus)

5. **Litvinova M.N.** Elektroopticheskaja moduljacija i preobrazovanie nemonohromaticeskogo izlucheniya v kristallah niobata litija. Habarovsk: Izdvo DVGUPS, 2007, 80 p. (rus)

6. **Litvinova M.N., Krishtop V.V., Stroganov V.I. et al.** Elektroopticheskaja moduljacija shirokopolosnogo izlucheniya v kristalle niobata litija. *Izv. vuzov. Priborostroenie*, 2007, Vol. 80, № 9, pp. 16–18. (rus)

7. **Goncharova P.S., Krishtop V.V., Sui A.V., Tolstov E.V., Pikul O.Yu.** The electro-optical control of nonmonochromatic light in a system of two anisotropic crystals. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2012, № 1 (141), pp. 82–86. (rus)

8. **Lopatina P.S., Krishtop V.V., Stroganov V.I. et al.** Elektroopticheskaja moduljacija shirokopolosnogo sveta s gaussovskim amplitudnym raspredeleniem spektra. *Optika i spektroskopija*, 2012, Vol. 113, № 2, pp. 219–221. (rus)

КНЯЗЬКОВ Анатолий Викторович — доктор физико-математических наук, доцент кафедры физической электроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
akniazkov@mail.ru

УДК 535.3:536.423.4

В.А. Арбузов, Н.С. Буфетов, О.З. Алюкаева

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПЛОТНОСТИ И КОНЦЕНТРАЦИИ ВОДНЫХ РАСТВОРОВ СОЛЕЙ ОПТИЧЕСКИМ СПОСОБОМ (НА ПРИМЕРЕ БРОМИДА ЛИТИЯ)

V.A. Arbuzov, N.S. Bufetov, O.Z. Aliukaeva

Kutateladze Institute of Thermal Physics, Siberian Branch, RAS
1 Academician Lavrentyev Ave., Novosibirsk, 630092, Russia.

THE DETERMINATION OF DENSITY AND CONCENTRATION OF AQUEOUS SOLUTIONS OF SALTS BY OPTICAL WAY (LITHIUM BROMIDE AS AN EXAMPLE)

Представлены результаты исследования методики определения плотности и концентрации водных растворов солей на примере раствора бромида лития. При этом используются изменения показателя преломления в зависимости от плотности раствора. Получены значения показателя преломления для раствора LiBr в зависимости от концентрации и температуры для монохроматического излучения с длинами волн 660 и 532 нм.

АБСОРБЦИЯ, ПОКАЗАТЕЛЬ ПРЕЛОМЛЕНИЯ, КОНЦЕНТРАЦИЯ ВОДНОГО РАСТВОРА, БРОМИД ЛИТИЯ, РЕФРАКТОМЕТРИЯ.

The results of investigation into a technique for determination of density and concentration of aqueous solutions of salts through a lithium bromide solution as an example have been presented, using changes of a refractive index that depend on solution density. Refractive index values for LiBr solution depending on concentration and temperature for monochromatic radiation at wavelengths of 660 and 532 nm were obtained.

ABSORPTION, REFRACTIVE INDEX, AQUEOUS SOLUTION CONCENTRATION, LITHIUM BROMIDE, REFRACTOMETRY.

Эффективность работы абсорбционных аппаратов и ректификационных колонн зависит от компонентов [1], участвующих в массообменных процессах. Бесконтактным методам мониторинга концентрации отдается предпочтение, особенно при необходимости контроля агрессивных сред.

В данной работе на примере водного раствора литиевой соли бромида водорода — LiBr исследуется возможность определения концентрации этой соли в воде посредством измерения показателя преломления методами оптической гониометрии. Соль LiBr широко используется в качестве абсорбента водяных паров в абсорбционных тепловых машинах: тепловых насосах и холодильниках.

Методы и результаты исследований

Методика проведения измерений показателя преломления достаточно подробно представлена в работе [2]. Определение показателя преломления необходимо для предварительных оценок характеристик измерительной системы и, в частности, чувствительности. Растворы были приготовлены на основе дистиллированной воды и кристаллического LiBr марки ХЧ.

Метод измерения основан на зависимости показателя преломления от концентрации ξ и температуры T среды. Исследовалась возможность реализации метода в заданных диапазонах указанных величин. С этой целью были получены значения

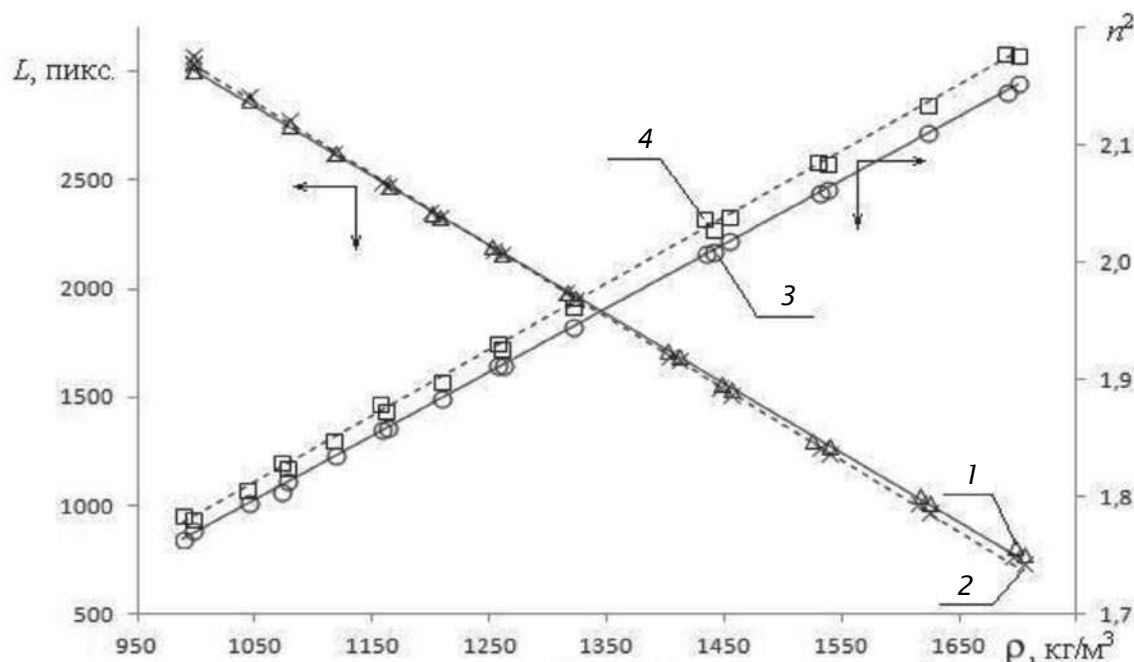


Рис. 1. Зависимости расстояния между центрами изображений крестовидной диафрагмы (1, 2) и квадрата показателя преломления раствора (3, 4) от плотности раствора для двух длин волн: $\lambda = 660$ нм (1, 3) и $\lambda = 532$ нм (2, 4)

показателя преломления n при различных концентрациях раствора ($0 \leq \xi \leq 60$ %) и температурах ($20 \leq T \leq 40$ °C) для монохроматического излучения с длинами волн λ , равными 660 и 532 нм, по методике, описанной в работе [2]. Концентрация определялась по измеренным величинам плотности ρ и температуры T раствора на основе табличных данных [3].

На рис. 1 показана полученная зависимость квадрата показателя преломления от плотности раствора в выбранном диапазоне концентраций и температур при заданных длинах волн светового поля. Эта зависимость представляется линейными функциями, с величинами достоверности аппроксимации R^2 , для $\lambda = 660$ и 532 нм соответственно [4] в следующем виде:

$$n_{660}^2 = 5,4537 \cdot 10^{-4} \rho + 1,2254, R^2 = 0,9998;$$

$$n_{532}^2 = 5,6433 \cdot 10^{-4} \rho + 1,2205, R^2 = 0,9989.$$

При выборе параметров оптической схемы гониометра использовались результаты анализа, полученные в работе [5]. Был изготовлен макет измерительного прибора, схема которого представлена на рис. 2.

Принцип действия устройства аналогичен гониометру, но с некоторыми изменениями, которые позволяют работать с системами, находящимися под вакуумом. Для исследований использовался макет установки, предназначенной для измерений и регистрации изменений концентрации в процессе абсорбции в реальных массообменных абсорбционных аппаратах.

Наибольшая чувствительность в выбранной оптической схеме гониометра достигается, во-первых, при большом угле падения луча на грань призмы в пределах, исключающих виньетирование выходного светового поля; во-вторых, при значении угла при вершине стеклянной призмы, приблизительно равном 30°; в-третьих, при показателе преломления материала призмы, превышающем показатель преломления тестируемой жидкости при всех ее возможных концентрациях.

Отличие данной системы от системы гониометра состоит в использовании матрицы веб-камеры 7 в качестве измерителя. С ее помощью на компьютер 8 передается два изображения крестовидной диафрагмы 2: одно прошло через кювету, минуя призму,

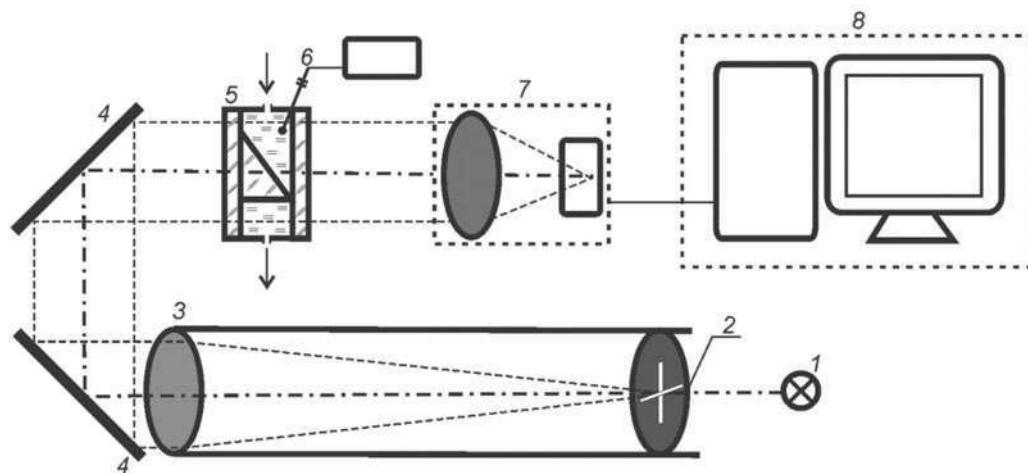


Рис. 2. Схема измерительной установки:

1 – монохроматический осветитель; 2 – крестовидная диафрагма; 3 – коллиматор; 4 – поворотные зеркала, расположенные под углом 45°; 5 – кювета с призмой и исследуемым водным раствором (LiBr); 6 – термопара; 7 – веб-камера с матрицей 640×480 ($3,89 \times 2,92$ мм); 8 – персональный компьютер (ПК)

другое прошло через кювету и призму 5. Характеристикой преломления в этом случае будет расстояние L (в пикселях матрицы) между двумя изображениями.

На рис. 3 приведены зависимости расстояния между прямым и испытанным пре-

ломление изображениями от концентрации раствора при различных температурах. С изменением температуры происходит «расслоение» зависимости. Это отчетливо видно на увеличенном фрагменте рис. 3, а (рис. 3, б).

«Расслоение» кривой $L(\xi)$ при изменении

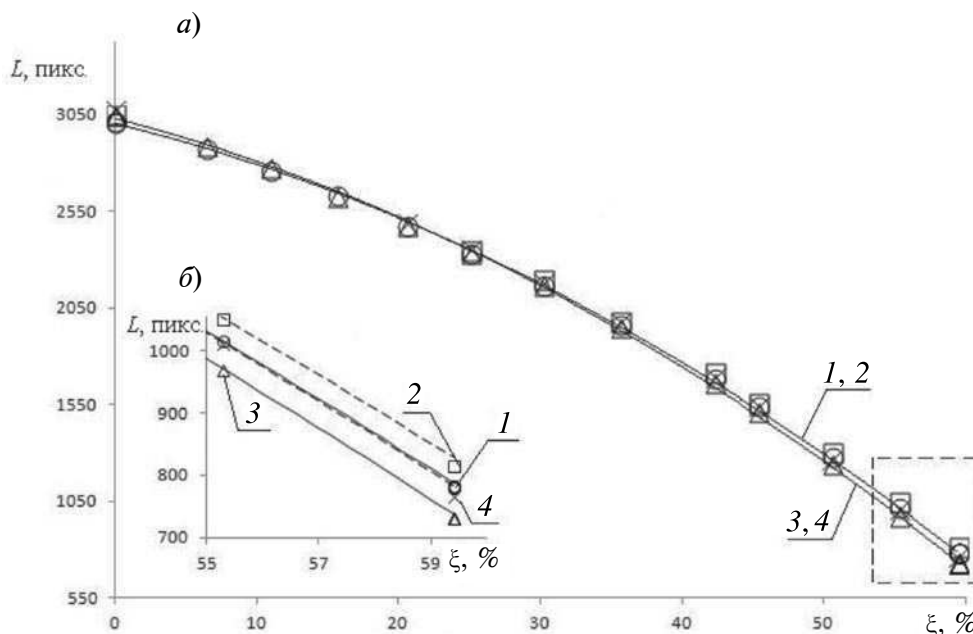


Рис. 3. Зависимости расстояния между изображениями крестовидной диафрагмы от концентрации водного раствора (а, б) при разных температурах T и двух значениях длины волны λ монохроматического излучения; T , °C: $23,8 \pm 0,6$ (1, 3), $39,2 \pm 1,5$ (2, 4); λ , нм: 660 (1, 2), 532 (3, 4); б – фрагмент графика, соответствующий области 55,0 – 59,5 %



температуры создает некоторые экспериментальные неудобства: перед измерениями требуется дополнительная калибровка зависимостей $L(\xi)$ при разных температурах.

Поскольку характеристикой преломления является расстояние L , то по аналогии с зависимостью $n^2(\rho)$ на рис. 1 представлена экспериментально полученная кривая $L(\rho)$. Видно, что функция $L(\rho)$, в отличие от $L(\xi)$, не зависит от температуры. Поэтому для практического определения плотности водного раствора соли при измерениях на данной установке можно рекомендовать использование формул линейной зависимости типа

$$\rho = aL + b, \quad (1)$$

для калибровки после каждой юстировки оптической системы. Конкретно для приводимых здесь данных (для длин волн 600 и 532 нм):

$$\rho_{660} = -0,31606L + 1947,2;$$

$$\rho_{532} = -0,30613 \cdot L + 1923,9.$$

Следует отметить, что значения величины достоверности аппроксимации очень близки к единице: для $\lambda = 660$ нм она составляет $R^2 = 0,99959$, а для $\lambda = 532$ нм — $R^2 = 0,99963$.

При практическом применении метода

требуется по полученным значениям L , на основании калибровочных данных типа (1), определять плотность раствора, находящегося в кювете. С помощью зависимости $\xi = f(T, \rho)$ [3] восстанавливаются значения концентрации.

Применение данной методики в комплексе с используемой аппаратурой для двух длин волн излучения в разных спектральных областях, обеспечивает значение чувствительности метода при определении плотности не хуже $0,3 \text{ кг} \cdot \text{м}^{-3} \cdot \text{пикс}^{-1}$ и концентрации — $0,02 (\%) \cdot \text{пикс}^{-1}$.

Итак, в результате проведенных исследований получены значения показателя преломления водного раствора бромида лития в диапазоне его концентраций от 0 до 60 % для двух длин волн монохроматического излучения: $\lambda = 660$ и 532 нм.

Показано, что зависимость показателя преломления от концентрации и температуры обобщаются с помощью одной переменной — плотности водного раствора ρ .

Создан действующий макет прибора и разработана методика определения концентрации водного раствора бромида лития оптическим методом. Предлагаемая методика обладает высокой чувствительностью и оперативностью.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Накоряков, В.Е.** Исследование нестационарного совместного тепломассопереноса при неизотермической абсорбции [Текст] / В.Е. Накоряков, Н.С. Буфетов, Р.А. Дехтярь // Труды Института перспективных исследований; Под ред. В.Е. Накорякова и др. — Новосибирск, 2003. — С. 3-34-3-41.
2. **Арбузов, В.А.** Определение концентрации бромистого лития в водном растворе по коэффициенту преломления [Текст] / В.А. Арбузов, Н.С. Буфетов, Т.Ю. Ляшенко // Труды X Международной конференции «Оптические методы исследования потоков», 23-26 июня 2009 г., Москва. — М.: МЭИ, 2009. — С. 310-313.
3. **Löwer, H.** Termodinamischen und physicalische

Eigenschaften der wässrigen Lithiumbromid Lösung [Text]: Dissertation / H. Löwer. — Karlsruhe, 1960. — 97 p.

4. **Ландсберг, Г.С.** Оптика: Учебное пособие для вузов [Текст] / Г.С. Ландсберг; 6-е изд., стереотип. — М.: Физматлит, 2003. — 848 с.

5. **Алюкаева, О.З.** Создание методики определения плотности и концентрации водных растворов солей оптическим способом (на примере лития бромида) [Текст] / О.З. Алюкаева // Всероссийский конкурс «Научное развитие молодых ученых»: Материалы работ победителей и лауреатов конкурса, 2012 г., Санкт-Петербург. — СПб: Изд-во Политехнич. ун-та, 2012. — С. 80-95.

REFERENCES

1. **Nakoriakov V.E., Bufetov N.S., Dekhtiar' R.A.** Issledovanie nestatsionarnogo sovmestnogo teplomassoperenosa pri neizotermicheskoi absorbtzii.

Trudy Instituta perspektivnykh issledovaniy, Novosibirsk, 2003, pp. 3-34-3-41. (rus)

2. **Arbuzov V.A., Bufetov N.S., Liashenko T.Yu.**

Opređenje kontsentratsii bromistogo litiia v vodnom rastvore po koeffitsientu prelomleniia. Trudy Kh Mezhdunarodnoi konferentsii «Opticheskie metody issledovaniia potokov», Moscow, MEI, 2009, pp. 310–313. (rus)

3. Löver H. Termodinamischen und physikalische Eigenschaften der wässrigen Lithiumbromid Lösung. Karlsruhe, 1960, 97 p.

4. Landsberg G.S. Optika.: Uchebnoe posobie

dlia vuzov. Moscow, Fizmatlit, 2003, 848 p. (rus)

Aliukaeva O.Z. Sozdanie metodiki opredeleniia plotnosti i kontsentratsii vodnykh rastvorov solei opticheskim sposobom (na primere litiia bromida). Vserossiiskii konkurs «Naukoemkie innovatsionnye proekty molodykh uchenykh»: Materialy rabot pobeditelei i laureatov konkursa, St.-Petersburg, Polytechnical University Publishing House, 2012, pp. 80–95. (rus)

БУФЕТОВ Николай Сергеевич — кандидат технических наук, старший научный сотрудник Института теплофизики им. С.С. Кутеладзе СО РАН.

630090, г. Новосибирск, пр. Академика Лаврентьева, 1
bufetov@itp.nsc.ru

АРБУЗОВ Виталий Анисифорович — доктор технических наук, главный научный сотрудник Института теплофизики им. С.С. Кутеладзе СО РАН.

630090, г. Новосибирск, пр. Академика Лаврентьева, 1
arbuzov@itp.nsc.ru

АЛЮКАЕВА Ольга Зарифовна — лаборант Института теплофизики им. С.С. Кутеладзе СО РАН.

630090, г. Новосибирск, пр. Академика Лаврентьева, 1
aliukaeva@yandex.ru

УДК 57.086.2

*Н.Е. Морозова, А.Д. Ведяйкин, А.В. Сабанцев,
Г.Е. Побегалов, С.В. Мурашов, М.А. Ходорковский*

ФОРМИРОВАНИЕ МЕМБРАННЫХ ТУБУЛЯРНЫХ СТРУКТУР ИЗ ГЕПАТОЦИТОВ ЧЕЛОВЕКА

*N.E. Morozova , A.D. Vedyaykin, A.V. Sabantsev,
G.E. Pobegalov, S.V. Murashov, M.A. Khodorkovskiy*

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

MEMBRANE TETHER FORMATION FROM HUMAN HEPATOCYTES

Посредством формирования мембранных тубулярных структур определены значения силы натяжения и обобщенной вязкости клеточных мембран гепатоцитов человека (клеточная линия HepG2). Стационарная сила натяжения мембраны составила 40 ± 3 пН, обобщенная вязкость мембраны составила $0,27 \pm 0,07$ пН·с/мкм. Разработанная методика может быть использована для исследования взаимосвязи различных факторов (в том числе употребления этанола) с механическими свойствами мембран клеток печени.

МЕМБРАННЫЕ ТУБУЛЯРНЫЕ СТРУКТУРЫ, ОПТИЧЕСКАЯ ЛОВУШКА, HEPG2, КЛЕТОЧНАЯ МЕМБРАНА, ГЕПАТОЦИТЫ.

For the first time to our knowledge the mechanical properties (membrane tension and apparent viscosity) of human hepatocyte (HepG2 cell line) membranes were measured by membrane tether formation using optical trap. Membrane tension and apparent membrane viscosity were measured to be 40 ± 3 pN and 0.27 ± 0.07 pN·s/ μ m respectively. The developed procedure can be used to study connections between liver cell membrane mechanics and different factors, including ethanol and drug consumption, aging, pathological processes, etc.

MEMBRANE TETHER FORMATION, OPTICAL TRAP, HEPG2, CELL MEMBRANE, HEPATOCYTES.

Физические характеристики клеточной мембраны играют важную роль в гомеостазе клеток за счет влияния на целый ряд связанных с мембраной ферментативных и рецепторных систем [1]. Свойства клеточных мембран гепатоцитов тесно связаны с функционированием данного типа клеток [2].

Методами спектроскопии электронного парамагнитного резонанса [3–5] и де-

поляризации флуоресценции [6, 7, 1, 8] была продемонстрирована тесная связь вязкости плазматических мембран клеток печени с различными функциональными состояниями.

Так, было показано, что этанол вызывает снижение вязкости мембран клеток печени как *in vivo* [7], так и в культуре [6]. В работе [1] была продемонстрирована кор-

реляция вязкости мембраны клеток печени с различными патологиями у пациентов, в том числе вызванными потреблением этанола. Кроме того, было показано, что целый ряд лекарственных веществ, в том числе анестетики, способны изменять вязкие свойства клеточных мембран и для некоторых из них именно этим можно объяснить физиологический эффект [9]. Также было показано, что накопление в клетках пероксидов липидов и активных форм кислорода, связанное со старением, вызывают увеличение вязкости мембран клеток печени [10].

Несмотря на успешность описанных подходов к изучению вязкости клеточных мембран, они обладают рядом недостатков: косвенные измерения не позволяют получать абсолютные значения вязкости и других механических параметров мембран. Кроме того, измерения проводятся не на живых клетках, а на мембранных фракциях гомогенизированных клеток. В частности, это не позволяет оценить разброс измеряемых параметров от клетки к клетке и проследить динамику изменения механических параметров мембран в ответ на изменение внешних условий.

В связи с этим представляется перспективным использование метода измерения механических свойств клеточных мембран посредством формирования мембранных тубулярных структур при помощи оптической ловушки (ОЛ) [11–13] для измерения абсолютных величин механических параметров мембран клеток печени на уровне одиночных клеток.

В 1989 г. [14] была впервые продемонстрирована возможность формирования мембранных тубулярных структур (МТС) из клеточной мембраны при помощи ОЛ. В опытах исследовались растительные клетки, а сила прикладывалась к мелким клеточным органеллам.

Первый количественный эксперимент по исследованию свойств клеточной мембраны посредством формирования МТС при помощи ОЛ был описан в работе [15], где изучались механические свойства мембраны конуса роста нейронов. Позднее описанная в этой статье методика была ис-

пользована для исследования свойств различных эукариотических и прокариотических клеток [12, 16, 17].

Целью данной работы было определение механических характеристик (натяжения и вязкости) клеточной мембраны гепатоцитов человека (клеточная линия HepG2) посредством формирования МТС при помощи ОЛ, а также изучение динамики различных, в том числе релаксационных, процессов в ходе формирования МТС из данных клеток.

Материалы и методы исследования

Оптическая ловушка (лазерный, или оптический пинцет) — метод удержания и манипулирования объектами с помощью сфокусированного луча лазера. Впервые ОЛ была предложена А. Ашкином в 1978 г., и уже в 80-х годах данный метод был использован для изучения биологических объектов (бактерий) [18].

В основе работы ОЛ лежит явление захвата и удержания микро- и наночастиц (размеры от 5 нм до 10 мкм) сфокусированным лазерным пучком. ОЛ позволяет прикладывать и измерять силы в диапазоне 0,01 — 100 пН с временным разрешением порядка миллисекунд. Следует отметить, что ОЛ является достаточно малоинвазивным методом, так как излучение используемых лазеров, как правило, почти не поглощается в живых тканях. Об этом свидетельствует тот факт, что клетки бактерий *E.coli* способны успешно и многократно делиться, находясь в оптической ловушке [19]. Тем не менее, есть свидетельства о том, что оптическая ловушка вызывает локальный нагрев образца на величину около 1,2 °С на 100 мВт лазерной мощности [20].

Оптическая ловушка позволяет формировать МТС из различных фосфолипидных мембран [15, 12, 16, 17]. В эксперименте по формированию МТС используются клетки, закрепленные на поверхности покровного стекла. При помощи оптической ловушки микросфера приводится в соприкосновение с плазматической мембраной. После образования контакта между микросферой и мембраной микросфера с постоянной скоростью отводится от клетки, вытягивая



за собой участок мембраны, формируя тем самым МТС. Когда сила, действующая на микросферу со стороны МТС, становится больше, чем максимальная сила оптической ловушки, микросфера покидает ловушку, МТС сокращается, и микросфера возвращается в исходное положение. В процессе эксперимента отслеживается положение микросферы в ловушке, а затем проводится анализ смещения микросферы из ее центра, что позволяет определить силу, действующую на микросферу со стороны МТС.

Экспериментальная установка. Установка была подробно описана ранее [21, 22]. При помощи луча инфракрасного лазера Spectra-Physics BL-106C с длиной волны 1064 нм, сфокусированного при помощи масляного иммерсионного объектива с числовой апертурой 1.46 'Plan-Apochromat' 100×/1.46 Oil DIC производства фирмы Carl Zeiss, создается оптическая ловушка. Перемещение объекта относительно оптической ловушки осуществляется при помощи пьезостолика производства фирмы Physik Instrumente (PI). Для регистрации изображений используются охлаждаемые ПЗС-камеры Photometrics Cascade II 1024 и Andor iXon3 897.

Подготовка экспериментального образца клеток НерG2, закрепленных на поверхности покровного стекла. Указанная подготовка выполняется в представленной далее последовательности.

1. Для выращивания клеток линии НерG2 используются покровные стекла 18 × 18 мм (Mentzel Glasser). Перед использованием покровные стекла промываются водопроводной водой, затем дистиллированной водой и тщательно промываются водой MilliQ, после чего стекла обрабатываются этиловым спиртом для удаления воды, для дополнительной очистки и стерилизации.

2. Покровные стекла высушиваются и покрываются поли-*L*-лизинном (Sigma). Для этого на покровное стекло наносится 25 мкл раствора поли-*L*-лизина в воде в концентрации 0,01 %.

3. После инкубации в течение 30 мин при комнатной температуре покровное стекло промывается водой MilliQ и исполь-

зуется в качестве подложки для роста культуры клеток НерG2.

4. Культура клеток НерG2, выращенная на поверхности пластиковых культуральных чашек (Greiner), переводится в суспензию при помощи трипсина, после чего рассеивается на покрытые полилизинном покровные стекла в питательной среде ДМЕМ с добавлением 10 % фетальной бычьей сыворотки (Gibco), 2 mM *L*-глутамина и гентамицина в концентрации 20 мкг/мл при 37 °C в атмосфере 5 %-го CO₂.

5. Ночью клетки растут в CO₂-инкубаторе, после чего используются для эксперимента. Покровные стекла с клетками закрепляются на предметные стекла при помощи двухсторонней клейкой ленты; при этом образуется канал между покровным и предметным стеклами, в котором осуществляется эксперимент.

6. Далее в канал с клетками вмываются микросферы из полистирола диаметром 2,5 мкм (Bangs Laboratories) в разведении 1 : 100 в клеточной среде ДМЕМ. В ходе проведения эксперимента при помощи нагревательного кольца для объектива температура образца поддерживается на уровне 37 °C. Эксперимент проводится в течение 1,5 ч с момента приготовления образца.

Протокол эксперимента. Последовательность действий в ходе эксперимента по формированию МТС схематически представлена на рис. 1, а. Сначала микросфера из полистирола захватывается в оптическую ловушку и приводится в соприкосновение с мембраной клетки. Спустя примерно 10 с микросфера начинает перемещаться с постоянной скоростью в направлении от поверхности клетки при помощи оптической ловушки. В ходе этого процесса при помощи ПЗС-камеры Andor регистрируются изображения микросферы в ОЛ. После смещения пьезостолика на заданное расстояние (20 мкм) перемещение прекращается, и регистрируется релаксация силы, действующей на микросферу со стороны МТС. В заключительной фазе эксперимента ОЛ выключается, и при помощи ПЗС-камеры регистрируется динамика возврата микросферы к поверхности клетки.

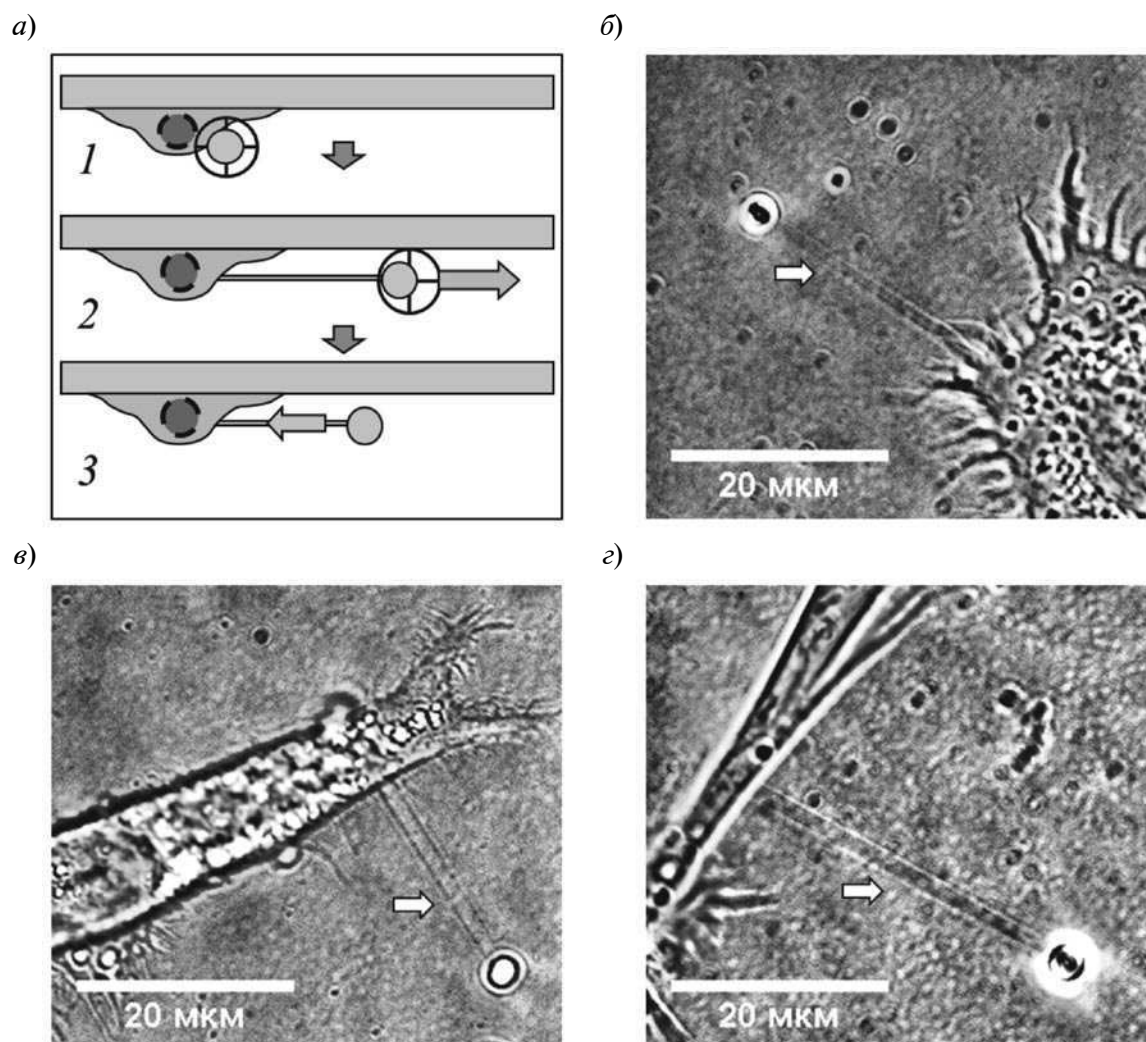


Рис. 1. Схема эксперимента (а) по формированию мембранных тубулярных структур (МТС) из клеток НерG2 и изображения МТС (показаны стрелками) в режиме дифференциального интерференционного контраста (б – г).

1 – закрепление микросферы на клеточной мембране; 2 – формирование МТС; 3 – регистрация динамики возврата микросферы к поверхности клетки после выключения оптической ловушки

По окончании эксперимента проводится калибровка оптической ловушки по силе вязкого трения. Для этого образец перемещается относительно микросферы в ОЛ при помощи пьезостолика с заданной скоростью попеременно в противоположных направлениях. При этом микросфера смещается из центра ловушки на расстояние, пропорциональное силе вязкого трения, действующей на движущуюся микросферу (указанная сила скомпенсирована силой, действующей на микросферу со стороны ОЛ). Траектория микросферы регистрируется при помощи

ПЗС-камеры Andor, что позволяет определить зависимость силы, действующей на микросферу со стороны ОЛ, от смещения микросферы из центра ОЛ.

Обработка экспериментальных данных. Экспериментальные данные обрабатывались при помощи программного пакета ImageJ [23] (набор подпрограмм Fiji [24]). Для определения положения микросферы изображение инвертировалось, обрабатывалось фильтром высоких частот, после чего определялся центр масс изображения микросферы.

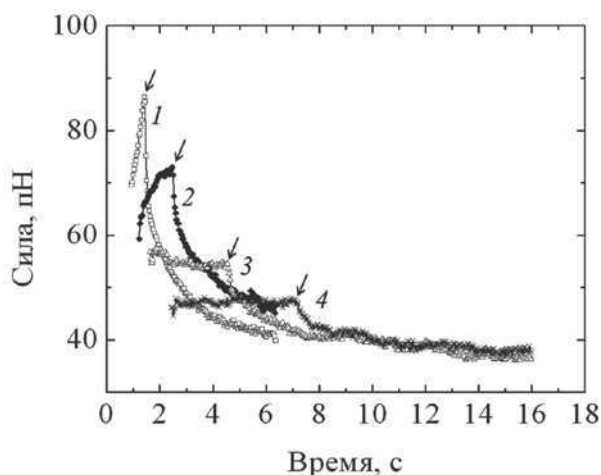


Рис. 2. Зависимости силы, действующей на микросферу, от времени в ходе эксперимента по формированию МТС из клеток НерG2 при различных скоростях удлинения МТС, мкм/с: 20 (1), 10 (2), 5 (3) и 3 (4); стрелки указывают моменты прекращения удлинения МТС

Результаты и их обсуждение

Описанная выше экспериментальная процедура позволила успешно осуществлять формирование МТС из мембран гепатоцитов человека (клеточная линия НерG2). На рис. 1, б – г представлены изображения МТС в режиме дифференциального интерференционного контраста. Для подчеркивания слабоконтрастных МТС на фоне высоко контрастных изображений клеток НерG2, изображения обработаны фильтром CLANE из пакета Fiji, позволяющим усилить локальный контраст.

В результате эксперимента были получены временные зависимости силы, действующей на микросферу в ходе формирования МТС, при различных скоростях удлинения МТС (рис. 2). С увеличением скорости уд-

линения МТС сила, действующая на микросферу, растет. Линейная регрессия этой зависимости позволила определить стационарную силу натяжения мембраны (она составила 40 ± 3 пН), а также обобщенную вязкость мембраны [25] ($0,27 \pm 0,07$ пН·с/мкм). При низких скоростях удлинения МТС данный процесс носит квазистационарный характер: сила, действующая на микросферу, не зависит от длины МТС. В то же время при более высокой скорости удлинения МТС квазистационарность процесса нарушается. Данный эффект ранее не был описан в литературе и, по всей видимости, наблюдается впервые.

Кроме того, анализ релаксационных кривых силы после прекращения удлинения МТС показал, что процесс релаксации имеет многостадийный характер и плохо описывается одной затухающей экспоненциальной функцией. Для описания зависимости от времени силы, действующей на микросферу со стороны МТС при постоянной длине МТС, требуется не менее двух затухающих экспоненциальных функций. При этом характерные времена обеих экспонент уменьшаются с увеличением скорости удлинения МТС (см. таблицу).

Также была проанализирована кинетика сокращения МТС после выключения ОЛ. На рис. 3, а приведен пример зависимости длины МТС от времени в ходе этого процесса. Знание траектории микросферы позволяет проанализировать уравнение движения последней под действием силы со стороны МТС, а также силы вязкого трения. Уравнение движения микросферы в данном случае можно записать как

$$ma = F_i(t) - 6\pi R\mu V, \quad (1)$$

где m – масса микросферы (8,3 пг); a – ускорение микросферы; F_i – сила, дей-

Зависимость характерных времен релаксации силы, действующей на микросферу со стороны МТС, от скорости удлинения МТС

Скорость удлинения МТС, мкм·с ⁻¹	Характерное время релаксации компоненты, с	
	быстрой	медленной
2	$0,204 \pm 0,06$	$8,4 \pm 3,3$
3	$0,195 \pm 0,05$	$3,7 \pm 0,4$
5	$0,11 \pm 0,01$	$1,9 \pm 0,1$
10	$0,050 \pm 0,002$	$1,40 \pm 0,02$

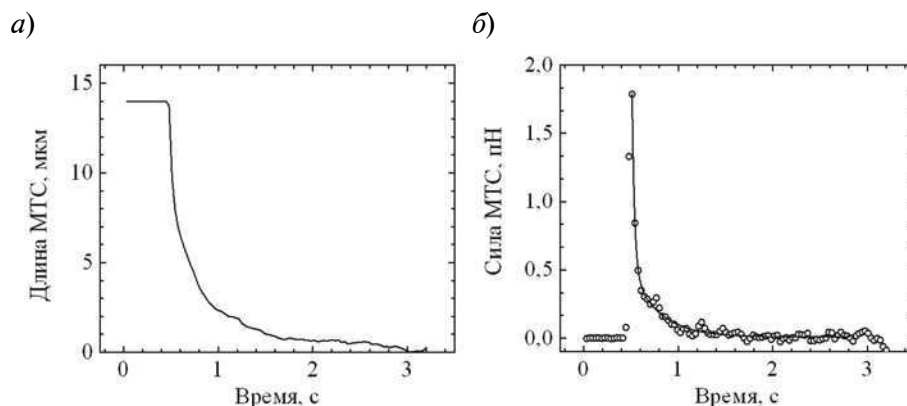


Рис. 3. Кинетика сокращения МТС после момента выключения оптической ловушки ($t = 0,5$ с): *а* – изменение длины МТС, *б* – изменение силы, действующей на микросферу

ствующая на микросферу со стороны МТС; R – радиус микросферы (1,25 мкм); V – скорость микросферы; μ – динамическая вязкость среды (0,0084 Пуаз [26]).

Таким образом, зная траекторию микросферы $x(t)$, выражение для силы $F_i(t)$ можно определить как

$$F_i(t) = md^2x(t)/dt^2 + 6\pi R\mu dx(t)/dt. \quad (2)$$

Анализ траектории показал, что первое слагаемое в уравнении (2) на три порядка меньше второго. Следовательно, уравнение для силы, действующей на микросферу со стороны МТС, можно записать в упрощенном виде:

$$F_i(t) \approx 6\pi R\mu dx(t)/dt. \quad (3)$$

На рис. 3, *б* приведен пример зависимости $F_i(t)$, полученной на основании траектории микросферы (рис. 3, *а*) по формуле (3). Данный анализ показал, что после выключения оптической ловушки сила натяжения МТС резко снижается, причем этот процесс описывается двухэкспоненциальной кинетикой с характерными временами 330 ± 20 и 27 ± 2 мс. Быстрое снижение силы МТС до значений, которые ниже стационарного натяжения мембраны, свидетельствует о наличии лимитирующей стадии в процессе релаксации МТС. Последняя может быть связана с затрудненным прохождением мембраны через основания МТС. В пользу этой гипотезы также свидетельствует тот факт, что толщина МТС в ходе релаксации существенно увеличивается (данные не представлены).

Методика формирования МТС при помощи оптической ловушки позволила впервые определить абсолютные величины механических характеристик (натяжения и вязкости) клеточных мембран гепатоцитов человека (клеточная линия HepG2). Стационарная сила натяжения мембраны составила 40 ± 3 пН, а обобщенная вязкость мембраны составила $0,27 \pm 0,07$ пН·с/мкм.

Кроме того, впервые были охарактеризованы релаксационные процессы при прекращении удлинения МТС, а также при сокращении МТС после выключения ОЛ. Показано, что в обоих случаях релаксационные процессы имеют сложный, двухэкспоненциальный характер. Кроме того, характерные времена обеих компонент релаксации силы натяжения МТС после окончания удлинения снижаются с увеличением скорости предшествующего удлинения. Также впервые наблюдался нестационарный характер процесса удлинения МТС при больших (10 мкм/с и выше) скоростях удлинения.

Измеренное значение обобщенной вязкости близко к ранее полученному для конусов роста нейронов межпозвоночного ганглия цыпленка ($0,2$ пН·с/мкм [15]). При этом стационарная сила натяжения МТС клеток HepG2 существенно больше значений, полученных для конусов роста нейронов (6 пН [15]), и практически совпадает со значениями, полученным для клеточной линии фибробластов мыши 3T3 (40 пН [27]) и для сперматозоидов червя-нематоды *C.elegans* (36 пН [28]).



Таким образом, продемонстрирована применимость методики измерения натяжения и вязкости клеточных мембран посредством формирования МТС при помощи оптической ловушки для изучения гепатоцитов человека. Этот подход позволит по-новому взглянуть на взаимосвязь различных факторов (этанола, лекарственных препаратов, паталогических процессов, старения) с механическими параметрами мембран клеток печени. Кроме того, возможность про-

ведения измерений на уровне одиночных клеток позволяет оценить разброс и динамику механических свойств мембран клеток печени.

Работа проведена с использованием уникальной установки «Лазерный пинцет» при финансовой поддержке Минобрнауки России (ГК № 14.518.11.7034, стипендия Президента России № СП-5651.2013.4), РФФИ (гранты №12-04-31536 и №12-04-32060) и Фонда содействия развитию малых форм предприятий в научно-технической сфере «УМНИК».

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Schuller, A.** The fluidity of liver plasma membranes from patients with different types of liver injury [Text] / A. Schuller, J.A. Solis-Herruzo, J. Moscat [et al.] // *Hepatology*. — 1986. — Vol. 6. — № 4. — P. 714–717.
2. **Schachter, D.** Fluidity and function of hepatocyte plasma membranes [Text] / D. Schachter // *Hepatology*. — 1984. — Vol. 4. — № 1. — P. 140–151.
3. **Gordon, L.M.** Spin label studies on rat liver and heart plasma membranes: Effects of temperature, calcium, and lanthanum on membrane fluidity [Text] / L.M. Gordon, R.D. Sauerheber, J.A. Esgate // *J. Supramol. Struct.* — 1978. — Vol. 9. — № 3. — P. 299–326.
4. **Gordon, L.M.** The increase in bilayer fluidity of rat liver plasma membranes achieved by the local anesthetic benzyl alcohol affects the activity of intrinsic membrane enzymes [Text] / L.M. Gordon, R.D. Sauerheber, J.A. Esgate [et al.] // *J. Biol. Chem.* — 1980. — Vol. 255. — № 10. — P. 4519–4527.
5. **Sauerheber, R.D.** Spin label studies on rat liver plasma membrane: Calcium effects on membrane fluidity [Text] / R.D. Sauerheber, L.M. Gordon // *Proc. Soc. Exp. Biol. Med.* — 1975. — Vol. 150. — № 1. — P. 28–31.
6. **Polokoff, M.A.** Chronic ethanol increases liver plasma membrane fluidity [Text] / M.A. Polokoff, T.J. Simon, R.A. Harris [et al.] // *Biochemistry*. — 1985. — Vol. 24. — No. 13. — P. 3114–3120.
7. **Schuller, A.** The fluidity of plasma membranes from ethanol-treated rat liver [Text] / A. Schuller, J. Moscat, E. Diez [et al.] // *Mol. Cell. Biochem.* — 1984. — Vol. 64 — № 1. — P. 89–95.
8. **Shi, Q.Y.** Effects of ursodeoxycholic acid on the liver plasma membrane fluidity, hepatic glutathione concentration, hepatic estrogen receptors and progesterone receptors in pregnant rats with ethinylestradiol and progesterone induced intrahepatic cholestasis [Text] / Q.Y. Shi, B.H. Kong, K.D. Ma [et al.] // *Zhonghua Fu Chan Ke Za Zhi*. — 2003. — Vol. 38. — № 11. — P. 680–682.
9. **Goldstein, D.B.** The effects of drugs on membrane fluidity [Text] / D.B. Goldstein // *Annu. Rev. Pharmacol. Toxicol.* — 1984. — Vol. 24. — P. 43–64.
10. **Hashimoto, M.** Relationship between age-related increases in rat liver lipid peroxidation and bile canalicular plasma membrane fluidity [Text] / M. Hashimoto, M.H. Shahdat, T. Shimada [et al.] // *Exp. Gerontol.* — 2001. — Vol. 37. — № 1. — P. 89–97.
11. **Chen, Y.** The constitutive equation for membrane tether extraction [Text] / Y. Chen, D.K. Yao, J.Y. Shao // *Ann. Biomed. Eng.* — 2010. — Vol. 38. — № 12. — P. 3756–3765.
12. **Dai, J.** Membrane tether formation from blebbing cells [Text] / J. Dai, M.P. Sheetz // *Biophys. J.* — 1999. — Vol. 77. — № 6. — P. 3363–3370.
13. **Schumacher, K.R.** Computational analysis of the tether-pulling experiment to probe plasma membrane-cytoskeleton interaction in cells [Text] / K.R. Schumacher, A.S. Popel, B. Anvari [et al.] // *Phys. Rev. E. Stat. Nonlin. Soft Matter. Phys.* — 2009. — Vol. 80. — № 4. — Pt. 1. — 041905 p.
14. **Ashkin, A.** Internal cell manipulation using infrared laser traps [Text] / A. Ashkin, J.M. Dziedzic // *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*. — 1989. — Vol. 86. — № 20. — P. 7914–7918.
15. **Dai, J.** Mechanical properties of neuronal growth cone membranes studied by tether formation with laser optical tweezers [Text] / J. Dai, M.P. Sheetz // *Biophys. J.* — 1995. — Vol. 68. — № 3. — P. 988–996.
16. **Jauffred, L.** Visco-elastic membrane tethers extracted from *Escherichia coli* by optical tweezers [Text] / L. Jauffred, T.H. Callisen, L.B. Oddershede // *Biophys. J.* — 2007. — Vol. 93. — № 11. — P. 4068–4075.
17. **Li, Z.** Membrane tether formation from outer hair cells with optical tweezers [Text] / Z. Li, B.

Anvari, M. Takashima [et al.] // *Biophys. J.* — 2002. — Vol. 82. — № 3. — P. 1386–1395.

18. **Ashkin, A.** Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles [Text] / A. Ashkin, J.M. Dziedzic, J.E. Bjorkholm, S. Chu // *Opt. Lett.* — 1986. — Vol. 11. — № 5. — 288 p.

19. **Ericsson, M.** Sorting out bacterial viability with optical tweezers [Text] / M. Ericsson, D. Hanstorp, P. Hagberg [et al.] // *J. Bacteriol.* — 2000. — Vol. 182. — № 19. — P. 5551–5555.

20. **Liu, Y.** Evidence for localized cell heating induced by infrared optical tweezers [Text] / Y. Liu, D.K. Cheng, G.J. Sonek [et al.] // *Biophys. J.* — 1995. — Vol. 68. — № 5. — P. 2137–2144.

21. **Побегалов, Г.Е.** Изменение механических свойств молекулы ДНК при взаимодействии с интеркалирующим красителем YOYO-1 [Текст] / Г.Е. Побегалов, А.Н. Арсениев, А.Д. Ведяйкин [и др.] // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2013. — № 1(165). — С. 136–143.

22. **Сабанцев, А.В.** Модернизация флуоресцентного микроскопа для исследования биологических структур с субдифракционным разрешением [Текст] / А.В. Сабанцев, Г.Е. Побегалов, С.В. Мурашов [и др.]. // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2012. — № 2. — С. 94–99.

23. **Schneider, C.A.** NIH image to image J.: 25 years of image analysis [Text] / C.A. Schneider, W.S. Rasband, K.W. Eliceiri // *Nat. Methods.* — 2012. — Vol. 9. — № 7. — P. 671–675.

24. **Schindelin, J.** Fiji: an open-source platform for biological-image analysis [Text] / J. Schindelin, I. Arganda-Carreras, E. Frise [et al.] // *Nat. Methods.* — 2012. — Vol. 9. — № 7. — P. 676–682.

25. **Hochmuth, F.M.** Deformation and flow of membrane into tethers extracted from neuronal growth cones [Text] / F.M. Hochmuth, J.Y. Shao, J. Dai, M.P. Sheetz // *Biophys. J.* — 1996. — Vol. 70. — № 1. — P. 358–369.

26. **Gosgnach, W.** Shear stress induces iNOS expression in cultured smooth muscle cells: Role of oxidative stress [Text] / W. Gosgnach, D. Messika-Zeitoun, W. Gonzalez [et al.] // *Am. J. Physiol. Cell Physiol.* — 2000. — Vol. 279. — № 6. — P. C1880–C1888.

27. **Pontes, B.** Cell cytoskeleton and tether extraction [Text] / B. Pontes, N.B. Viana, L.T. Salgado [et al.] // *Biophys. J.* — 2011. — Vol. 101. — № 1. — P. 43–52.

28. **Batchelder, E.L.** Membrane tension regulates motility by controlling lamellipodium organization [Text] / E.L. Batchelder, G. Hollopeter, C. Campillo [et al.] // *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.* — 2011. — Vol. 108. — № 28. — P. 11429–11434.

REFERENCES

1. **Schuller A., Solis-Herruzo J.A., Moscat J. et al.** The fluidity of liver plasma membranes from patients with different types of liver injury. *Hepatology*, 1986, Vol. 6, № 4, pp. 714–717.

2. **Schachter D.** Fluidity and function of hepatocyte plasma membranes. D. Schachter *Hepatology*, 1984, Vol. 4, № 1, pp. 140–151.

3. **Gordon L.M., Sauerheber R.D., Esgate J.A.** Spin label studies on rat liver and heart plasma membranes: Effects of temperature, calcium, and lanthanum on membrane fluidity. *J. Supramol. Struct.*, 1978, Vol. 9, № 3, pp. 299–326.

4. **Gordon L.M., Sauerheber R.D., Esgate J.A. et al.** The increase in bilayer fluidity of rat liver plasma membranes achieved by the local anesthetic benzyl alcohol affects the activity of intrinsic membrane enzymes. *J. Biol. Chem.*, 1980, Vol. 255, № 10, pp. 4519–4527.

5. **Sauerheber R.D., Gordon L.M.** Spin label studies on rat liver plasma membrane: Calcium effects on membrane fluidity. *Proc. Soc. Exp. Biol. Med.*, 1975, Vol. 150, № 1, pp. 28–31.

6. **Polokoff M.A., Simon T.J., Harris R.A. et al.** Chronic ethanol increases liver plasma membrane fluidity. *Biochemistry*, 1985, Vol. 24, № 13, pp. 3114–3120.

7. **Schuller A., Moscat J., Diez E. et al.** The fluidity of plasma membranes from ethanol-treated rat liver. *Mol. Cell. Biochem.*, 1984, Vol. 64, № 1, pp. 89–95.

8. **Shi Q.Y., Kong B.H., Ma K.D. et al.** Effects of ursodeoxycholic acid on the liver plasma membrane fluidity, hepatic glutathione concentration, hepatic estrogen receptors and progesterone receptors in pregnant rats with ethinylestradiol and progesterone induced intrahepatic cholestasis. *Zhonghua Fu Chan Ke Za Zhi*, 2003, Vol. 38, № 11, pp. 680–682.

9. **Goldstein D.B.** The effects of drugs on membrane fluidity. *Annu. Rev. Pharmacol. Toxicol.*, 1984, Vol. 24, pp. 43–64.

10. **Hashimoto M., Shahdat M.H., Shimada T. et al.** Relationship between age-related increases in rat liver lipid peroxidation and bile canalicular plasma membrane fluidity. *Exp. Gerontol.*, 2001, Vol. 37, № 1, pp. 89–97.

11. **Chen Y., Yao D.K., Shao J.Y.** The constitutive equation for membrane tether extraction. *Ann. Biomed. Eng.*, 2010, Vol. 38, № 12, pp. 3756–3765.

12. **Dai J., Sheetz M.P.** Membrane tether formation from blebbing cells. *Biophys. J.*, 1999, Vol. 77, № 6, pp. 3363–3370.



13. Schumacher K.R., Popel A.S., Anvari B. et al. Computational analysis of the tether-pulling experiment to probe plasma membrane-cytoskeleton interaction in cells. *Phys. Rev. E. Stat. Nonlin. Soft Matter. Phys.*, 2009, Vol. 80, № 4, Pt. 1, p. 041905.
14. Ashkin A., Dziedzic J.M. Internal cell manipulation using infrared laser traps. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 1989, Vol. 86, № 20, pp. 7914–7918.
15. Dai J., Sheetz M.P. Mechanical properties of neuronal growth cone membranes studied by tether formation with laser optical tweezers. *Biophys. J.*, 1995, Vol. 68, № 3, pp. 988–996.
16. Jauffred L., Callisen T.H., Oddershede L.B. Visco-elastic membrane tethers extracted from *Escherichia coli* by optical tweezers. *Biophys. J.*, 2007, Vol. 93, № 11, pp. 4068–4075.
17. Li Z., Anvari B., Takashima M. et al. Membrane tether formation from outer hair cells with optical tweezers. *Biophys. J.*, 2002, Vol. 82, № 3, pp. 1386–1395.
18. Ashkin A., Dziedzic J.M., Bjorkholm J.E., Chu S. Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles. *Opt. Lett.*, 1986, Vol. 11, № 5, p. 288.
19. Ericsson M., Hanstorp D., Hagberg P. Sorting out bacterial viability with optical tweezers. et al. *J. Bacteriol.*, 2000, Vol. 182, № 19, pp. 5551–5555.
20. Liu Y., Cheng D.K., Sonek G.J. et al. Evidence for localized cell heating induced by infrared optical tweezers. *Biophys. J.*, 1995, Vol. 68, № 5, pp. 2137–2144.
21. Pobegalov G.E., Arseniev A.N., Vedyaykin A.D., Sokolova M.L., Fedorova Ya.V., Sabantsev A.V. Changing of DNA molecule mechanical properties during interaction with YOYO-1 intercalating dye. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2013, № 1(165), pp. 136–143. (rus)
22. Sabantsev A.V., Pobegalov G.E., Murashov S.V., Mel'nikov A.S., Khodorkovskii M.A. The fluorescent microscope upgrading to investigate biological structures with subdiffractional resolution. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2012, № 2(146), pp. 94–99. (rus)
23. Schneider C.A., Rasband W.S., Eliceiri K.W. NIH image to image J.: 25 years of image analysis. *Nat. Methods*, 2012, Vol. 9, № 7, pp. 671–675.
24. Schindelin J., Arganda-Carreras I., Frise E. et al. Fiji: an open-source platform for biological-image analysis. *Nat. Methods*, 2012, Vol. 9, № 7, pp. 676–682.
25. Hochmuth F.M., Shao J.Y., Dai J., Sheetz M.P. Deformation and flow of membrane into tethers extracted from neuronal growth cones. *Biophys. J.*, 1996, Vol. 70, № 1, pp. 358–369.
26. Gosgnach W., Messika-Zeitoun D., Gonzalez W. et al. Shear stress induces iNOS expression in cultured smooth muscle cells: Role of oxidative stress. *Am. J. Physiol. Cell Physiol.*, 2000, Vol. 279, № 6, pp. C1880–C1888.
27. Pontes B., Viana N.B., Salgado L.T. et al. Cell cytoskeleton and tether extraction. *Biophys. J.*, 2011, Vol. 101, No. 1, pp. 43–52.
28. Batchelder E.L., Hollopeter G., Campillo C. et al. Membrane tension regulates motility by controlling lamellipodium organization. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 2011, Vol. 108, № 28, pp. 11429–11434.

МОРОЗОВА Наталия Евгеньевна — студентка Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
natashamor@rambler.ru

ВЕДЯЙКИН Алексей Дмитриевич — студент Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
god-fish@mail.ru

САБАНЦЕВ Антон Владимирович — аспирант кафедры биофизики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
sabantsev.a.v@gmail.com

ПОБЕГАЛОВ Георгий Евгеньевич — аспирант кафедры биофизики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
lwdrums@gmail.com

МУРАШОВ Сергей Вадимович — кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Проблемной научно-исследовательской лаборатории Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
smurashov@cef.spbstu.ru

ХОДОРКОВСКИЙ Михаил Алексеевич — кандидат физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Проблемной научно-исследовательской лаборатории Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
khodorkovskii@mail.ru



УДК 615.012.8

*Н.В. Скворцов, В.О. Самойлов,
И.В. Ларионов, А.Г. Болдырев*

**ЭФФЕКТИВНЫЙ СОРБЕНТ ДЛЯ ЭЛИМИНАЦИИ ЭНДОТОКСИНА
В БИОПРЕПАРАТАХ ГЕННО-ИНЖЕНЕРНОГО ГЕНЕЗА
И БИОЛОГИЧЕСКИХ ЖИДКОСТЯХ**

*N.V. Skvortsov¹, V.O. Samoilov¹,
I.V. Larionov², A.G. Boldyrev²*

¹ St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

²State Scientific-Research Institute of Pure Biochemicals,
7 Pudozhskaya St. St. Petersburg, 197110, Russia.

**AN EFFECTIVE SORBENT FOR ELIMINATION ENDOTOXIN
IN BIOLOGICAL PRODUCTS OF GENETICALLY ENGINEERED GENESIS
AND BIOLOGICAL LIQUIDS**

Разработан сорбент, предназначенный для элиминации эндотоксина в биологических жидкостях и биопрепаратах, полученных методами генной инженерии. В качестве основы сорбента используется высокопроницаемая биосовместимая матрица на основе регенерированной целлюлозы. Оценена эффективность сорбента при сорбции эндотоксина из модельных сред и растворов белка.

СОРБЕНТ, ЭЛИМИНАЦИЯ, ЭНДОТОКСИН, БИОПРЕПАРАТЫ, ГЕННАЯ ИНЖЕНЕРИЯ, РАСТВОР БЕЛКА, БИОСОВМЕСТИМАЯ МАТРИЦА.

An effective sorbent designed to eliminate endotoxin from biological fluids and products has been developed. A highly permeable biocompatible matrix based on regenerated cellulose was used as a base of the sorbent. The efficiency of the sorbent for endotoxin from model solutions and protein solutions were estimated.

SORBENT, ELIMINATION, ENDOTOXIN, BIOLOGICAL PRODUCTS, GENETIC ENGINEERING, PROTEIN SOLUTION, BIOCOMPATIBLE MATRIX.

Разработка сорбционных материалов и их разнообразное применение является одним из основных направлений биотехнологии и в смежных науках. В биохимии это выделение и очистка веществ, в области экологии — мониторинг окружающей среды, в медицине и медицинской промышленности это финишная очистка биопрепаратов, приемы эфферентной терапии [1]. Последнее направление следует рассматривать как особую область применения сорбентов, поскольку они в этом случае, в рамках процессов энтеро-, гемо- и ликво-

росорбции, выступают непосредственно в качестве терапевтического средства.

В связи с очень высокими требованиями к чистоте биотехнологических и особенно фармацевтических продуктов, сорбционные технологии (хроматографические методы) по существу являются единственным подходом, обеспечивающим достаточный уровень индивидуальности и чистоты препаратов.

Целью данной статьи является описание экспериментов, ориентированных на элиминацию липополисахарида (ЛПС) в био-

препаратах и биологических жидкостях, с использованием сорбента Сфероцелл С80. Этот сорбент обладает комплексом свойств, включающим высокую селективность, обратимость и большую емкость сорбции по ЛПС, а также механическую стабильность и способность к многократному использованию.

Основу сорбента составляет универсальная матрица Сфероцелл, разработанная в лаборатории сорбентов и носителей Государственного научно-исследовательского института особо чистых биопрепаратов. Матрица характеризуется высокой проницаемостью, достаточной гидродинамической жесткостью, низким уровнем неспецифических взаимодействий. На ее базе создан ряд высокочистых сорбентов ионообменного, аффинного и гидрофобного типов, разработаны эффективные хроматографические процессы выделения биологически активных веществ [2].

Одной из центральных задач получения высокочистых биопрепаратов генно-инженерного происхождения является элиминация в них высокотоксичного липополисахарида (эндотоксина). Фармакопеи Всемирной организации здравоохранения рекомендуют лимитировать содержание эндотоксина в лекарственных формах внутривенного назначения пределом 0,5 ppm (млн^{-1}). Превышение этого предела в препарате может приводить к развитию септического шока у пациентов [3, 4].

В настоящее время этот процесс элиминации ЛПС реализуется, как правило, с помощью уникального сорбента — Полимиксина Б сефарозы. В этом сорбенте в качестве матрицы носителя (основы сорбента) выступает гранулированный вариант высокопроницаемой сшитой сефарозы-6Б, в качестве аффинанта — Полимиксин Б, иммобилизованный на матрицу, — нативный вариант бактериального антибиотика. Этот сорбент представляет собой сложный молекулярный фрагмент со специфическим гидрофобно-гидрофильным балансом. Полимиксин Б является эффективным аффинантом для связывания ЛПС, при этом адсорбционную активность Полимиксина естественно связать с наличием в нем ги-

дрофобной компоненты. Сфероцелл 80 в качестве аффинанта также включает гидрофобный фрагмент. Именно благодаря ему сорбент демонстрирует высокую эффективность связывания ЛПС, обеспечивает высокие емкостные показатели. Так например, он позволяет получать моноклональные антитела, содержащие менее 0,625 ЕУ/мл ЛПС, из препарата с исходной концентрацией ЛПС от 20 до 100 ЕУ.

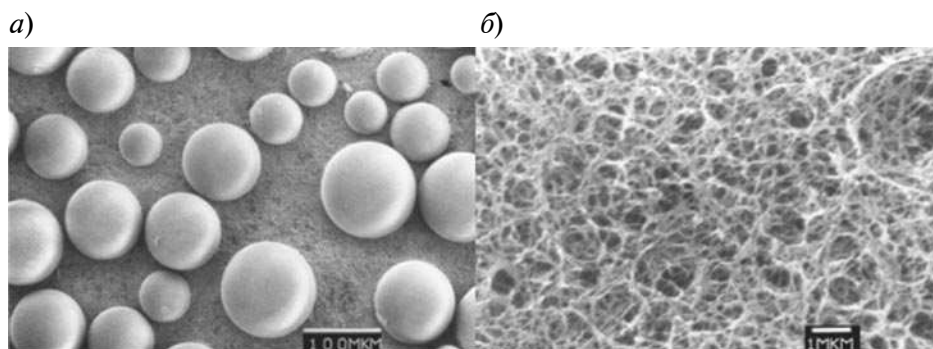
Однако используемый в прототипе аффинант — Полимиксин Б содержит в своей структуре, наряду с высокоспецифичным гидрофобным молекулярным фрагментом, массивный ионогенный фрагмент, включающий большое количество легко ионизируемых групп NH_2 , а также карбоновых фрагментов, что приводит к значительной фоновой сорбции белков по ионообменному механизму. В результате при очистке бычьей каталазы на сорбенте теряется до 25 % целевого белка, а при очистке БСА — до 20 % [5].

Наряду с указанным недостатком этого сорбента, в качестве дополнительного следует указать на относительно низкий уровень проницаемости матрицы-носителя этого сорбента — сефарозы-6Б, что, с учетом склонности ЛПС к образованию сложных ассоциатов с большими надмолекулярными размерами [5], затрудняет сорбцию ЛПС в объем зерна сорбента и, следовательно, существенно ограничивает его емкость.

Сорбент Сфероцелл С80 функционально построен аналогично описанному прототипу (Полимиксин Б сефароза). На нейтральную высокопроницаемую гидрофильную матрицу иммобилизованы аффинанты, специфически связывающие ЛПС. При этом используемый лиганд, как будет показано ниже, обладает весьма высоким сродством только к ЛПС.

Оригинальная матрица Сфероцелл, как показал опыт, характеризуется поровой структурой, также эффективной в отношении решаемой задачи.

Особенность высокопроницаемой поровой структуры носителя Сфероцелл (см. рисунок) состоит в том, что распределение пор по размерам бимодально. Существуют транспортные поры с характерным размером



Микрофотографии внешней (а) и внутренней (б) структуры одной гранулы сорбента Сфероцелл (получены методом сканирующей электронной микроскопии)

0,1 – 3,0 мкм (соответствующий удельный объем порового пространства для пор этого типа составляет 0,8 – 0,9), а также «хроматографические» поры с размерами 50 – 300 Å (удельный объем порового пространства для пор этого типа составляет 0,35 – 0,40), измеренные методами ртутной порометрии и эксклюзионной хроматографии соответственно. Наличие большого количества транспортных пор обеспечивает эффективный массоперенос в зерне сорбента для крупномолекулярных объектов, а гидрофобные аффинанты конкурентным образом разрушают ассоциаты ЛПС.

Такая структура носителя позволяет эффективно сорбировать молекулярные компоненты в объем зерна сорбента, в широком интервале размеров – от индивидуальных молекул до крупномасштабных ассоциатов, без потери емкости сорбента, что существенно при работе с ассоциирующимся ЛПС.

Гидрофобные радикалы, выбранные в качестве аффинантов, которые по существу представляют собой эквивалент алифатического фрагмента молекулы ЛПС, обеспечивают их эффективное высокоспецифическое связывание. При этом неспецифическая сорбция, обусловленная наличием ионогенной компоненты в структуре аффинанта прототипа, в этом случае, естественно, отсутствует.

В результате указанных особенностей отчистка препаратов на данном сорбенте, в отличие от отчистки на прототипе, практически не сопровождается потерей целевого белка. При хроматографии на Сфероцелле

С80 потери базового белка не превосходят 5 %. Соответствующие потери Полимиксина Б сефарозы составляют более 25 % [5].

Таким образом, сорбент Сфероцелл С80 по основным целевым эксплуатационным параметрам и характеристикам селективности существенно превосходит свой прототип – Полимиксин Б сефарозу.

В качестве адекватной характеристики сорбента как средства выделения и отчистки целевого компонента удобно использовать коэффициент распределения K_p для данного конкретного компонента. Величину K_p получают расчетным путем на основании данных о концентрации целевого компонента (в данном случае ЛПС) до и после завершения процесса сорбции:

$$K_p = C_{ext} / C_{int},$$

где C_{ext} , C_{int} – равновесные концентрации данного компонента во внешнем растворе и в объеме сорбента соответственно.

Данные о концентрации ЛПС (начальной и конечной) получают с использованием хромогенного LAL-теста. Указанный тест представляет собой определение эндотоксинов; LAL – *Limulus Amebocyte Lysate* (лизат амебоцитов *limulus*) [6].

Эксперименты по сорбции проводились в статических условиях путем приготовления растворов ЛПС с определенной концентрацией (в качестве исходного варианта) и/или путем прямого определения концентрации раствора ЛПС до и после сорбции с помощью хромогенного LAL-теста. Второй вариант состоит в разведении экспериментальных препаратов до уровня компетенции

Коэффициенты распределения K_p липополисахарида (ЛПС) для сорбента Сфероцелл С80 в альбумине

Условие получения	K_p для различных концентраций ЛПС		
	10 – 100 нг/мл	100 – 1000 нг/мл	1000 – 10 000 нг/мл
Раствор сорбента в альбумине предварительно выдержан	230	70	50
То же без предварительной выдержки	290	230	160

Примечание: концентрация водного раствора альбумина – 10 %

LAL-теста). Определенные таким образом коэффициенты распределения для Сфероцелла С80 представлены в таблице. По статистическим оценкам в рамках нескольких серий измерений погрешность приводимых величин укладывается в интервал $\pm 5\%$ от номинала.

Сравнение данных таблицы с литературными данными показывает, что в то время как коэффициент распределения, выражающий предельную степень отчистки препарата в системе «сорбент – раствор белка», составляет для Полимиксина Б сефарозы значение $K_p = 32 - 160$ [4], для сорбента Сфероцелл С80 этот коэффициент достигает значения 290 (см. таблицу). Результаты были получены на основе прямого тестирования проб после сорбции.

Для оценки селективности и эффективности сорбции ЛПС в условиях гемосорбции (при наличии в системе сопутствующих и конкурирующих белков) проводилась серия сравнительных экспериментов в 10%-м водном растворе альбумина; и эти данные представлены в таблице (также в статических условиях).

При этом емкость сорбента Сфероцелл С80 по ЛПС в условиях конкуренции с альбумином составляет 37000 нг/мл. Это существенно превышает соответствующую величину, характерную для сорбента прототипа.

Представления о характере конкуренции ЛПС и альбумина за адсорбционные

центры можно получить, сопоставив величины, приведенные в таблице.

Для оценки эффективности кратного использования сорбента Сфероцелл С80 был выполнен эксперимент по его регенерации путем отмывки этанолом в аппарате Сокслета. После восьмичасовой отмывки сорбента и стандартной процедуры – тренировки (уравновешивание сорбента в 0,1N растворе кислоты и 0,1N растворе щелочи с заключительной отмывкой водой до нейтральной реакции) показатели емкости изменились незначительно.

Таким образом, данным исследованием показано, что предлагаемая разработка – ЛПС-связывающий сорбент Сфероцелл С80 убедительно превосходит классический прототип по всем важнейшим эксплуатационным и физико-химическим параметрам. К ним относятся максимальная емкость, селективность сорбции, коэффициент распределения (определяет максимальную остаточную концентрацию ЛПС в препарате). В качестве его дополнительных преимуществ следует указать на возможность его многократного применения (с использованием промежуточной стерилизации). В этой же связи важно отметить отсутствие необходимости стерильной сборки колонок в исходном варианте, что обуславливает более низкую цену соответствующих устройств (разница – на порядок).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Черкасов, А.Н. Мембраны и сорбенты в биотехнологии [Текст] / А.Н. Черкасов, В.А. Пасечник. – Л.:Химия, 1991.–239 с.
2. Болдырев, А.Г. Разработка аффинных сорбентов для экстракорпоральной гемокор-

- рекции [Текст] / А.Г. Болдырев, А.А. Соколов, Н.М. Федорова [и др.] // «Фундаментальные и прикладные проблемы биотехнологии и медицины». Матер. Междунар. конф. – СПб., 2000. – С. 78–79.



3. Комитет экспертов ВОЗ по стандартизации биологических препаратов [Текст]: сорок шестой доклад; пер. с англ. // Всемирная организация здравоохранения (Женева), Комитет экспертов. — Женева: ВОЗ, 1998. — 120 с.

4. Trachsel, S. Association between inflammatory mediators and response to inhaled nitric oxide in a model of endotoxin-induced lung injury [Электронный ресурс] / S. Trachsel, G. Deby-Dupont, E. Maurenbrecher, [et al.] // Critical Care. — 2008. — Vol. 12. — № 5. — Режим доступа: ccforum.com/

content/12/5/R131

5. Гусаров, Д.А. Способы очистки биофармацевтических белков от эндотоксинов клеточной стенки [Текст] / Д.А. Гусаров // Биофармацевтический журнал. — 2009. — Т. 1. — № 3. — С. 10–17.

6. Associates of Cape Cod, Inc. Описание фирменного LAL теста и инструкция по работе с ним [Электронный ресурс]. Режим доступа: www.acciusa.com/pdfs/accProduct/inserts/ChromoLAL.pdf

REFERENCES

1. Cherkasov A.N., Pasechnik V.A. Membrany i sorbenty v biotekhnologii. Leningrad, Khimiia, 1991, 239 p. (rus)

2. Boldyrev A.G., Sokolov A.A., Fedorova N.M. et al. Razrabotka affinykh sorbentov dlia ekstrakorporal'noigemokorreksii. «Fundamental'nye i prikladnye problemy biotekhnologii i meditsiny». Mater. Mezhdunar. konf, St. Petersburg, 2000, pp. 78–79. (rus)

3. WHO Expert Committee on Biological Standardization: The 46th report. WHO, Geneva, 1998, 120 p.

4. Trachsel S., Deby-Dupont G., Maurenbrecher

E. et al. Association between inflammatory mediators and response to inhaled nitric oxide in a model of endotoxin-induced lung injury. Critical Care, 2008, Vol. 12, № 5. Available at: ccforum.com/content/12/5/R131.

5. Gusarov D.A. Sposoby ochistki biofarmatsevticheskikh belkov ot endotoksinov kletочноi stenki. *Biofarmatsevticheskii zhurnal*, 2009, Vol. 1, № 3, pp. 10–17. (rus)

6. Associates of Cape Cod, Inc. Chromo-LAL test Product Info Sheet. Available at: <http://www.acciusa.com/pdfs/accProduct/pisheets/ChromoLAL.pdf>

СКВОРЦОВ Никита Владиславович — аспирант кафедры биофизики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
aelu@yandex.ru

САМОЙЛОВ Владимир Олегович — член-кор. РАН, доктор медицинских наук, профессор, руководитель отделения медицинской физики и биоинженерии Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
deanery@mphf.spbstu.ru

ЛАРИОНОВ Иван Владимирович — аспирант кафедры биофизики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
larionov_ivanvl@mail.ru

БОЛДЫРЕВ Александр Георгиевич — кандидат технических наук, научный консультант Государственного научно-исследовательского института особочистых биопрепаратов.

197110, г. Санкт-Петербург, Пудожская ул., 7
Doc.Boldyrev@yandex.ru

УДК 541(64+14):539.199

*Н.А. Никонорова, В.М. Капралова,
Р.А. Кастро, Д.А. Журавлев*

ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ РЕЛАКСАЦИЯ ПРИВИТЫХ ПОЛИИМИДОВ С ДЛИННЫМИ ПОЛИТРЕТБУТИЛМЕТАКРИЛАТНЫМИ БОКОВЫМИ ЦЕПЯМИ

*N.A. Nikonorova¹, V.M. Kapralova²,
R.A. Castro³, D.A. Zhuravlev³*

¹ Institute of Macromolecular Compounds of RAS,
31 Bolshoi Av. V.O., St. Petersburg, Russia.

² St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, Russia.

³ Herzen State Pedagogical University
48 Moika Emb., St. Petersburg, 191186, Russia.

DIELECTRIC RELAXATION OF GRAFTED POLYIMIDES WITH LONG POLYTRETBUETHYLMETHACRYLATE SIDE CHAINS

Диэлектрическим методом исследована молекулярная подвижность полиимидных щеток: привитых сополимеров с основной полиимидной цепью и длинными политретбутилметакрилатными боковыми цепями различной длины. В стеклообразном состоянии обнаружены два релаксационных локальных процесса, β и β_1 , молекулярная подвижность которых слабо зависит от длины боковых цепей. В высокоэластическом состоянии наблюдали кооперативный релаксационный α -процесс, обусловленный сегментальным движением боковых ответвлений, для которого молекулярная подвижность уменьшается с ростом длины политретбутилметакрилатных боковых цепей.

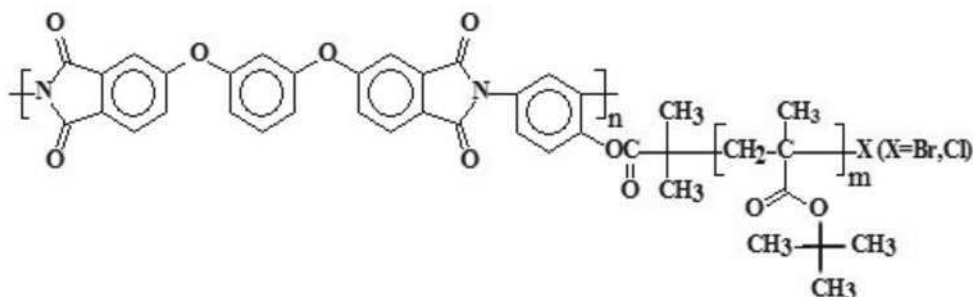
ПОЛИИМИДНЫЕ ЩЕТКИ, МОЛЕКУЛЯРНАЯ ПОДВИЖНОСТЬ, ВРЕМЯ РЕЛАКСАЦИИ, ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ.

Molecular mobility of polyimide brushes, grafted polymers with long polytretbutylmethacrylate side chains, was investigated by dielectric method. In the glassy state two local relaxation processes, β and β_1 , whose molecular mobility depends weakly on side chain lengths, were found. In the viscous elastic state the α cooperative relaxation process caused by segmental motion of side chains was observed. For the α process, the molecular mobility decreases with the length of polytretbutylmethacrylate side chains.

POLYIMIDE BRUSHES, MOLECULAR MOBILITY, RELAXATION TIME, DIELECTRIC SPECTROSCOPY.

В последние годы появились новые полимерные материалы, поражающие разнообразием химического строения, мо-

лекулярной архитектуры и соотношений молекулярных масс различных фрагментов, входящих в состав макромолекул. К поли-



Химическая формула полиимидных щеток, где $Q = -O-(1,3-C_6H_4)-O-$;
 $n = 40$; $m = 28$ (образец № 1), 60 (№ 2), 130 (№ 3), 240 (№ 4)

мерам сложной архитектуры относятся так называемые полимерные щетки, причем наибольший интерес представляют такие из них, в которых к полиимидным основным цепям привиты поливиниловые боковые цепи. Наличие полиимидной составляющей предопределяет высокую термостойкость и хорошие механические свойства, а возможность широкой вариации строения боковых цепей (включая введение функциональных групп), их длины и плотности прививки позволяет получать полимеры с заданным комплексом физических свойств.

Исследование молекулярной подвижности в полимерах выявляет связь между химической структурой и их физическими свойствами. В этом плане информативным является использование диэлектрического метода, который позволяет получать данные о процессах релаксации дипольной поляризации, обусловленных молекулярной подвижностью кинетических единиц, несущих полярную группу.

В данной работе диэлектрическим методом впервые исследована молекулярная подвижность полиимидных щеток (ПИЩ) с основной полиимидной цепью и боковыми политретбутилметакрилатными цепями различной длины (см. химическую формулу).

Кроме того, были изучены чистые политретбутилметакрилаты (ПтБМА) – боковые цепи, отщепленные от ПИЩ.

Задачей работы было определить молекулярные механизмы наблюдаемых процессов релаксации дипольной поляризации, обусловленных молекулярной подвижностью основных и боковых цепей ПИЩ, и

выявить влияние длины боковых цепей на кинетические параметры этих процессов.

ПИЩ получали так называемым методом «прививки от» [1–3], когда полимеризация проводилась на предварительно синтезированных мультицентровых полиимидных инициаторах. При таком способе синтеза ПИЩ получают с высокой степенью регулярности и с узкодисперсным распределением длины боковых полимерных цепей (индекс полидисперсности составляет около 1,2).

Состав сополимеров оценивали методом спектроскопии ^1H ЯМР по соотношению интегральных интенсивностей линий ароматических протонов и протонов боковых цепей.

Диэлектрические спектры получены на широкополосном диэлектрическом спектрометре «Concept-41 Novocontrol Technologies» с автоматическим частотным анализатором высокого разрешения ALPHA-ANB. Образцы прессовали между латунными электродами (диаметр верхнего электрода 10 – 20 мм) при температуре 140–150 °С, что примерно на 30 °С выше температуры стеклования T_g . Толщину образца задавали 50-микронными кварцевыми волокнами.

Для образцов 1 – 4 получены температурно-частотные зависимости диэлектрической проницаемости ϵ' , фактора диэлектрических потерь ϵ'' и тангенса угла диэлектрических потерь $\tan\delta$ в интервале частот $10^{-1} - 5 \cdot 10^6$ Гц и температур от –70 до +220 °С. Общая картина диэлектрического поведения аналогична для всех образцов. В качестве примера на рис. 1 представлены температурные зависимости $\tan\delta$

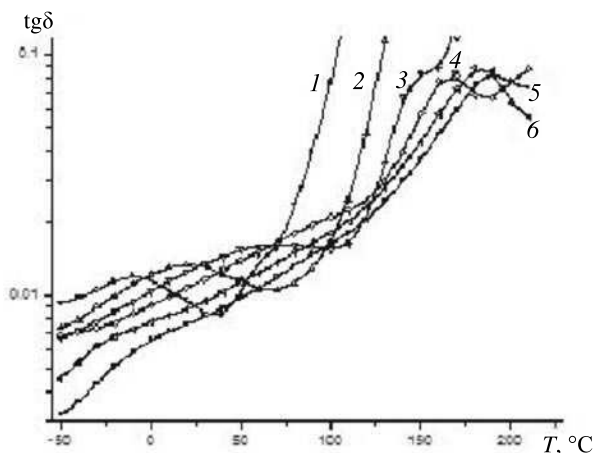


Рис. 1. Температурные зависимости $\text{tg}\delta$ для образца № 3 ($m = 130$) при различных частотах, Гц: 0,1 (1), 10 (2), 10^2 (3), $2 \cdot 10^3$ (4), $6,5 \cdot 10^4$ (5) и $5 \cdot 10^5$ (6)

при различных частотах для образца 3 (степень полимеризации $m = 130$).

Видно, что в исследованном интервале температур и частот имеются, по крайней мере, две области максимума: низкотемпературная и более высокотемпературная.

Анализ диэлектрических спектров проводили, описывая комплексную диэлектрическую проницаемость ε^* эмпирическим уравнением Гаврилика–Негами [4] (далее ГН):

$$\varepsilon^*(\omega) - \varepsilon_\infty = \sum_{k=1}^n \text{Im} \left[\frac{\Delta \varepsilon_k}{\{1 + (i\omega \tau_{HN_k})^{\alpha_k}\}^{\beta_k}} \right], \quad (1)$$

где

$$\varepsilon^* = \varepsilon'(\omega) - i\varepsilon''(\omega);$$

$$\omega = 2\pi f; \Delta \varepsilon_k = \varepsilon_0 - \varepsilon_\infty$$

— инкремент диэлектрической проницаемости ($\varepsilon_0 = \varepsilon'$ при $\omega \rightarrow 0$, $\varepsilon_\infty = \varepsilon'$ при $\omega \rightarrow \infty$); τ_{HNk} — характеристическое время релаксации Гаврилика–Негами; α_{HNk} и β_{HNk} — расчетные параметры, отвечающие расширению и асимметрии распределения времен релаксации соответственно; n — количество релаксационных процессов ГН.

При температурах выше температуры стеклования T_g в правую часть формулы (1)

добавляли вклад, обусловленный проводимостью:

$$\frac{\sigma_{dc} a}{\varepsilon_v \omega^s},$$

где σ_{dc} — удельная проводимость на постоянном токе; a — постоянная, измеряемая в Гц^{s-1} , $s < 1$; ε_v — диэлектрическая проницаемость вакуума.

Наиболее вероятное время релаксации $\tau_{\text{макс}}$, отвечающее значению времени релаксации на зависимости $\varepsilon'' = \varphi(f)$ при $\varepsilon''_{\text{макс}}$, было определено как [5]:

$$\tau_{\text{макс}} = \tau_{HN} \left[\frac{\sin \frac{\pi(\alpha_{HN})\beta_{HN}}{2(\beta_{HN} + 1)}}{\sin \frac{\pi(\alpha_{HN})}{2(\beta_{HN} + 1)}} \right]^{1/(\alpha_{HN})}. \quad (2)$$

Низкотемпературная область релаксации.

Для ПИЩ 1–4 в области низкотемпературного релаксационного процесса температурные зависимости времени релаксации в виде $\lg(\tau_{\text{макс}}) = \varphi(1/T)$ близки. Они лежат на одной прямой β (рис. 2) и описываются уравнением Аррениуса:

$$\tau_{\text{макс}} = \tau_0 \exp \left(\frac{E_a}{RT} \right), \quad (3)$$

где $\tau_0 = \tau_{\text{макс}}$ при $T \rightarrow \infty$; E_a — энергия активации; R — универсальная газовая постоянная.

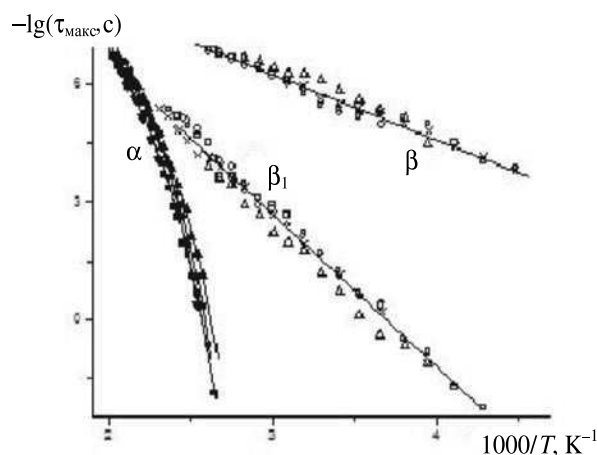


Рис. 2. Зависимости $-\lg(\tau_{\text{макс}})$ от обратной температуры в области β —(Δ , $\circ$, $\square$, $\times$), β_1 —(Δ , $\circ$, $\square$, $\times$) и α —($\blacktriangle$, $\bullet$, $\blacksquare$, $\blacktriangledown$) процессов для образцов № 1 (Δ , $\blacktriangle$), № 2 ($\circ$, $\bullet$), № 3 ($\square$, $\blacksquare$), № 4 ($\times$, $\blacktriangledown$)



Значения параметров $-\lg \tau_0$ и E_a составляют 11,1 и 31,0 кДж/моль соответственно.

Исследуемые в данной работе ПИЩ состоят из двух структурных компонентов: полиимидных основных цепей и политретбутилметакрилатных боковых ответвлений. Поэтому для идентификации молекулярных механизмов релаксационных процессов следует привлечь диэлектрические данные для чистого ПтБМА и для линейных ароматических гетероцепных полимеров.

Температурно-частотные координаты прямой β на рис. 2 для ПИЩ близки к таковым для релаксационного β -процесса, наблюдаемого в линейных полиэфирах и полиимидах различного строения и обусловленного локальными движениями ароматических колец и имидных циклов, которые связаны с полярными группами [6–9]. Можно полагать, что в ПИЩ низкотемпературный процесс может быть вызван локальной подвижностью полярных групп основной полиимидной цепи: поворотами на небольшие углы фенильных колец с прилегающими к ним простыми эфирными и имидными группами. Тот факт, что для ПИЩ 1–4 времена релаксации в области β -процесса практически совпадают, говорит о том, что его молекулярная подвижность не зависит от длины боковых политретбутилметакрилатных цепей.

Высокотемпературная область релаксации. Для высокотемпературного релаксационного процесса в ПИЩ частотные зависимости ε'' в интервале температур от -70 до $+100$ °С надежно описываются одним процессом ГН. Значения $\tau_{\max}$ для образцов 1–4 близки и лежат на прямой β_1 (см. рис. 2), для которой значения $-\lg \tau_0$ и E_a составляют 59,5 и 72,1 кДж/моль соответственно.

При более высоких температурах ($100 - 220$ °С) частотные зависимости ε'' уже невозможно описать одним процессом ГН, а только суммой двух релаксационных процессов: β_1 и α (рис. 3). Видно, что сумма двух процессов ГН с учетом проводимости (сплошная линия) удовлетворительно описывает экспериментальные данные.

Начиная со 100 °С, температурные зависимости величины $\lg(\tau_{\max})$ для β_1 -процесса лежат на продолжении прямой β_1 (см. рис. 2),

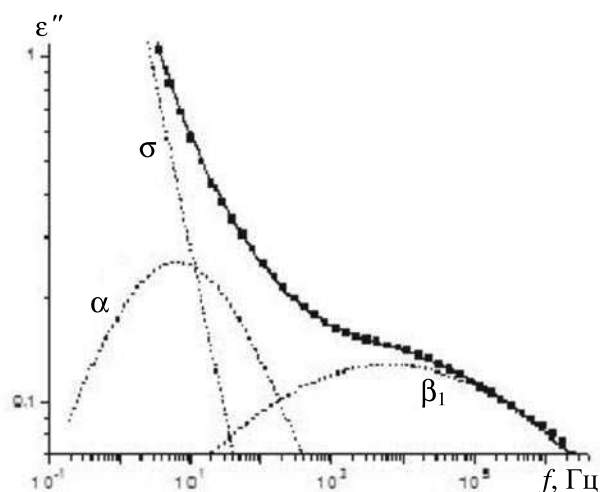


Рис. 3. Представление частотной зависимости ε'' для образца № 3 ($m = 130$) при 135 °С (экспериментальные точки) в виде суммы трех компонент (сплошная кривая), соответствующих β_1 - и α -процессам, а также вклада за счет проводимости σ (штриховые кривые)

а для α -процесса они криволинейны (область α на рис. 2) и надежно описываются эмпирическим уравнением Фогеля–Фульчера–Таммана–Гессе [10]:

$$\tau_{\max} = \tau_0 \exp\left(\frac{B}{T - T_0}\right), \quad (4)$$

где τ_0 , B и T_0 – параметры, не зависящие от температуры.

Нелинейность температурных зависимостей величины $\lg(\tau_{\max})$ характерна для кооперативных форм молекулярной подвижности, когда энергия активации изменяется с температурой. К такой форме относится, прежде всего, сегментальная подвижность, связанная с переходом в высокоэластическое состояние.

Температура стеклования для образцов 1–4 определена экстраполяцией зависимостей $-\lg(\tau_{\max}) = \phi(1/T)$, описанных уравнением (4), к значению $\lg(\tau_{\max}) = 0$, когда $\tau_{\max} = 1$ с. Параметры уравнения (4) и значения T_g для образцов 1–4 представлены в таблице.

Ранее в работах [11–14] для гомологического ряда полиметилакрилата (ПМА- n), включающего полибутилметакрилат (ПБМА)

Значения параметров уравнения (4) и температуры стеклования, найденные для α -процесса в полиимидных щетках

Номер образца	m	$-\lg(\tau_0, \text{с})$	$B, \text{К}$	$T_0, \text{К}$	$T_c, ^\circ\text{C}$
1	28	11,2	1888	308	108
2	60	12,5	2330	306	112
3	130	13,2	2892	294	116
4	240	11,7	2074	313	118

Примечания. Температура стеклования T_c определена экстраполяцией зависимости $-\lg(\tau_{\text{макс}}) = \phi(1/T)$ к значению $\lg(\tau_{\text{макс}}) = 0$; m — степень полимеризации

и его изомеры, было показано, что высокотемпературная область максимума $\varepsilon''(\text{tg}\delta)$ является результатом наложения двух релаксационных процессов (β_1 и α), обусловленных переориентацией полярных сложноэфирных групп в стеклообразном и в высокоэластическом состояниях соответственно.

Диэлектрическое поведение чистых полиметилметакрилатов различного строения и ПИЩ аналогично на качественном уровне. Можно полагать, что и в случае образцов № 1 — № 4 высокотемпературная область релаксации является результатом наложения двух релаксационных β_1 - и α -процессов, отражающих подвижность сложноэфирной группы в ПтБМА боковых цепях в стеклообразном и высокоэластическом состояниях соответственно.

В области β_1 -процесса молекулярная подвижность в ПИЩ не зависит от длины боковых цепей, так как кинетическая единица, ответственная за появление этого процесса, не меняется. В случае α -процесса температура стеклования увеличивается при удлинении боковых цепей (см. таблицу). Это означает, что молекулярная сегментальная подвижность ПтБМА цепей уменьшается.

Возрастание температуры T_c с ростом длины ПтБМА-цепей в ПИЩ не вызывает удивления. Известно, что для линейных аморфных полимеров при увеличении молекулярной массы температура стеклования повышается (сначала быстро, потом медленнее и затем достигает предельного значения) [15–17].

Определим эффект влияния основных полиимидных цепей на температуры стеклования боковых цепей ПИЩ. Для этого следует сравнить зависимости T_c от степени полимеризации m для ПИЩ, в которых ПтБМА боковые цепи одним концом прикреплены к основной цепи, с зависимостями для линейных ПтБМА, отщепленных от ПИЩ (рис. 4). Видно, что как и в случае ПИЩ, значения T_c для отщепленных ПтБМА увеличиваются при удлинении цепи. В то же время температуры стеклования для ПИЩ и отщепленных ПтБМА различаются незначительно. Это означает, что боковые ПтБМА-цепи в ПИЩ движутся практически независимо от основной по-

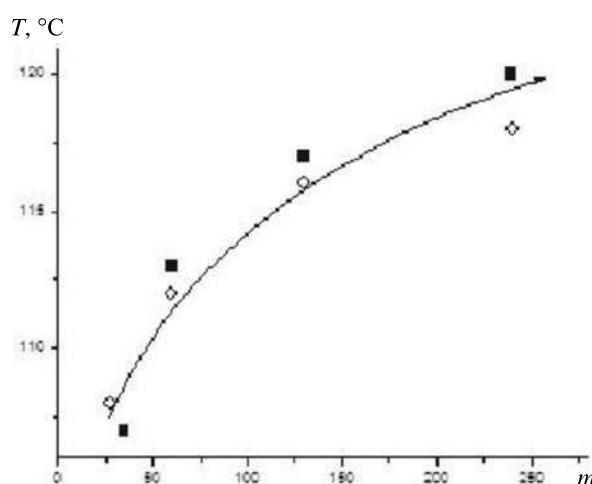


Рис. 4. Зависимости температуры стеклования ПИЩ (кружки) и отщепленных ПтБМА (квадраты) от степени полимеризации боковых цепей



лиимидной цепи и влияние ее на сегментальную молекулярную подвижность боковых цепей минимально. Обращает на себя внимание тот факт, что значения T_g для ПИЩ и отщепленных ПтБМА превышают значение 90 °С для коммерческого ПтБМА [14]. Более высокие значения T_g для исследованных систем могут быть связаны с особенностями синтеза, так как синтезируемые в данной работе ПтБМА имеют узкое молекулярно-массовое распределение [3]; это приводит к росту значения T_g по сравнению с коммерческим ПтБМА. В последних велика доля низкомолекулярных фракций, которые оказывают пластифицирующий эффект и, соответственно, понижают температуру стеклования T_g .

Следует подчеркнуть, что α -процесс в ПИЩ обусловлен сегментальной подвижностью именно длинных боковых ПтБМА-ответвлений. Релаксационный процесс, связанный с сегментальной подвижностью основных полиимидных цепей, не обнаружен на диэлектрических спектрах. Это обу-

словлено малой весовой долей полиимидного компонента по сравнению с весовой долей ПтБМА.

Таким образом, исследование молекулярной подвижности методом диэлектрической спектроскопии привитых сополимеров с основной полиимидной цепью и длинными политретбутилметакрилатными боковыми цепями различной длины выявило три области релаксации дипольной поляризации, обусловленные локальной подвижностью полярных групп полиимидной и политретбутилметакрилатной цепей, а также кооперативным сегментальным движением скелета длинных боковых ответвлений. Параметры локальных процессов слабо зависят от длины боковых цепей. Для сегментального процесса с ростом длины политретбутилметакрилатных боковых цепей их молекулярная подвижность уменьшается. Показано, что эффект влияния основных полиимидных цепей на сегментальную подвижность боковых ответвлений минимален.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Zhang, M.** Cylindrical polymer brushes [Text] / M. Zhang, A.H.E. Müller // J. Polym. Sci., Polym. Chem. — 2005. — Vol. 43. — P. 3461–3481.
2. **Sheiko, S.S.** Cylindrical molecular brushes: Synthesis, characterization, and properties [Text] / S.S. Sheiko, B.S. Sumerlin, K. Matyjaszewski // Progr. Polym. Sci. — 2008. — Vol. 33. — P. 759–785.
3. **Мелешко, Т.К.** Синтез мультицентровых мультиинициаторов для получения регулярно привитых сополимеров с помощью контролируемой радикальной полимеризации [Текст] / Т.К. Мелешко, Д.М. Ильгач, Н.Н. Богорад [и др.] // Высокомолек. соед. Б. — 2010. — Т. 52. — № 10. — С. 1840–1851.
4. **Havriliak, S.** A complex plane representation of dielectric and mechanical relaxation processes in some polymers [Text] / S. Havriliak, S. Negami // Polymer. — 1967. — Vol. 8 (1). — P. 161–210.
5. **Diaz-Calleja, R.** Comment on the maximum in the loss permittivity for the Havriliak–Negami equation [Text] / R. Diaz-Calleja // Macromolecules. — 2000. — Vol. 33. — № 24. — P. 8924–8924.
6. **Burshtein, L.L.** Local intramolecular mobility in linear polyesters simulating the structure of thermotropic polymers [Text] / L.L. Burshtein, T.I. Borisova, S.V. Zhukov [et al.] // Polymer. — 1999. — Vol. 40. — P. 1881–1887.
7. **Nikonorova, N.A.** Dielectric spectroscopy and molecular dynamics of epoxy oligomers with covalently bonded nonlinear optical chromophores [Text] / N.A. Nikonorova, M.Yu. Balakina, O.D. Fominykh [et al.] // Chem Phys Lett. — 2012. — Vol. 552. — P. 114–121.
8. **Chisca, S.** Dielectric behavior of some aromatic polyimide films [Text] / S. Chisca, V.E. Musteata, I. Sava, M. Bruma // Eur. Polym. J. — 2011. — Vol. 47. — P. 1186–1197.
9. **Jacobs, J.D.** Dielectric characteristics of polyimide CP2 [Text] / J.D. Jacobs, M.J. Arden, D.H. Wang [et al.] // Polymer. — 2010. — Vol. 51. — P. 3139–3146.
10. **Rault, J.J.** Origin of the Vogel–Fulcher–Tammann law in glass-forming materials: the α -bifurcation [Text] / J.J. Rault // Non-Cryst. Solids. — 2000. — Vol. 271. — P. 177–217.
11. **McCrum, N.G.** Anelastic and dielectric effects in polymeric solids [Text] / N.G. McCrum, B.E. Read, G. Williams. — London: John Wiley and Sons, 1967. — 617 p.
12. **Mpoukouvelas, K.** Origin of the α , β , ($\beta\alpha$), and «slow» dielectric processes in poly(ethyl methacrylate) [Text] / K. Mpoukouvelas, G. Floudas

//Macromolecules. — 2009. — Vol. 42. — № 13. — P. 4690–4700.

13. **Ngai, K.L.** Relaxation in poly(alkyl methacrylate)s: change of intermolecular coupling with molecular structure, tacticity, molecular weight, copolymerization, crosslinking, and nanoconfinement [Text] / K.L. Ngai, T.R. Gopalakrishnan, M. Beiner // *Polymer*. — 2006. — Vol. 47. — P. 7222–7230.

14. **Ménissiez, C.** Dielectric and mechanical relaxation behaviour in poly(butyl methacrylates) isomers [Text] / C. Ménissiez, B. Sixou, L. David, G. Vigier // *J. Non-Crystalline Solids*. — 2005. — Vol. 351. — P. 595–603.

REFERENCES

1. **Zhang M., Müller A.H.E.** Cylindrical Polymer Brushes. *Polym. Sci., Polym. Chem*, 2005, Vol. 43, pp. 3461–3481.

2. **Sheiko S.S., Sumerlin B.S., Matyjaszewski K.** Cylindrical molecular brushes: synthesis, characterization, and properties. *Progr. Polym. Sci*, 2008, Vol. 33, pp. 759–785.

3. **Meleshko T.K., Il'gach D.M., Bogorad N.N., Kukarkina N.V., Vlasova E.N., Dobrodumov A.V., Malakhova I.I., Gorshkov N.I., Krasikov V.D., Yakimansky A.V.** Synthesis of Multicentered Polyimide Initiators for the Preparation of Regular Graft Copolymers via Controlled Radical Polymerization. *Polymer Science, series B*, 2010, Vol. 52, № 10, pp. 1840–1851. (rus)

4. **Havriliak S., Negami S.** A complex plane representation of dielectric and mechanical relaxation processes in some polymers. *Polymer*, 1967, Vol. 8(1), pp. 161–210.

5. **Diaz-Calleja R.** Comment on the maximum in the loss permittivity for the Havriliak–Negami equation. *Macromolecules*, 2000, Vol. 33, № 24, pp. 8924–8924.

6. **Burshtein L.L., Borisova T.I., Zhukov S.V., Nikonorova N.A., Asinovskaya D.N., Skorokhodov S.S.** Local intramolecular mobility in linear polyesters simulating the structure of thermotropic polymers. *Polymer*, 1999, Vol. 40, pp. 1881–1887.

7. **Nikonorova N.A., Balakina M.Yu., Fominykh O.D., Pudovkin M.S., Vakhonina T.A., Diaz-Calleja R., Yakimansky A.V.** Dielectric spectroscopy and molecular dynamics of epoxy oligomers with covalently bonded nonlinear optical chromophores. *Chem Phys Lett*, 2012, Vol. 552, pp. 114–121.

8. **Chisca S., Musteata V.E., Sava I., Bruma M.** Dielectric behavior of some aromatic polyimide films. *Eur. Polym. J*, 2011, Vol. 47, pp. 1186–1197.

15. **Cown, J.M.G.** Some general features of T_g -M relations for oligomers and amorphous polymers [Text] / J.M.G. Cown // *Eur. Polym. J*. — Vol. 11. — P. 297–300.

16. **Kim, Y.W.** Molecular thermodynamic model of the glass transition temperature: dependence on molecular weight [Text] / Y.W. Kim, J.T. Park, J.H. Koh [et al.] // *Polym. For Advanced Technologies*. — 2008. — Vol. 19. — P. 944–946.

17. **Dobkowski, Z.** Influence of molecular weight distribution and long chain branching on the glass transition temperature of polycarbonate [Text] / Z. Dobkowski // *Eur. Polym. J*. — 1982. — Vol. 18. — P. 563–567.

9. **Jacobs J.D., Arden M.J., Wang D.H., Oun-aies Z., Berry R., Tan L.-S., Garrett P.H., Vaia R.A.** Dielectric characteristics of polyimide CP2. *Polymer*, 2010, Vol. 51, pp. 3139–3146.

10. **Rault J.J.** Origin of the Vogel-Fulcher-Tammann law in glass-forming materials: the a-b bifurcation. *Non-Cryst. Solids*, 2000, Vol. 271, pp. 177–217.

11. **McCrum N.G., Read B.E., Williams G.** Anelastic and dielectric effects in polymeric solids. London, John Wiley and Sons, 1967.

12. **Mpoukouvalas K., Floudas G.** Origin of the α , β , ($\beta\alpha$), and «slow» dielectric processes in poly(ethyl methacrylate). *Macromolecules*, 2009, Vol. 42, № 13, pp. 4690–4700.

13. **Ngai K.L., Gopalakrishnan T.R., Beiner M.** Relaxation in poly(alkyl methacrylate)s: change of intermolecular coupling with molecular structure, tacticity, molecular weight, copolymerization, crosslinking, and nanoconfinement. *Polymer*, 2006, Vol. 47, pp. 7222–7230.

14. **Ménissiez C., Sixou B., David L., Vigier G.** Dielectric and mechanical relaxation behaviour in poly(butyl methacrylates) isomers. *J. Non-Crystalline Solids*, 2005, Vol. 351, pp. 595–603.

15. **Cown J.M.G.** Some general features of T_g -M relations for oligomers and amorphous polymers. *Eur. Polym. J*, Vol.11, pp. 297–300.

16. **Kim Y.W., Park J.T., Koh J.H., Min B.R., Kim J.H.** Molecular thermodynamic model of the glass transition temperature: dependence on molecular weight. *Polym. For Advanced Technologies*, 2008, Vol. 19, pp. 944–946.

17. **Dobkowski Z.** Influence of molecular weight distribution and long chain branching on the glass transition temperature of polycarbonate. *Eur. Polym. J*, 1982, Vol. 18, pp. 563–567.

НИКОНОВА Наталья Алексеевна — кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Института высокомолекулярных соединений РАН.

199004, г. Санкт-Петербург, Большой пр. В.О., 31
n-nikonova2004@mail.ru

КАПРАЛОВА Виктория Маратовна — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры интегральной электроники Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
kapralova2006@yandex.ru

КАСТРО Арата Рене Алехандро — доктор физико-математических наук, профессор кафедры физической электроники Российского государственного педагогического университета им. А.И. Герцена.

191186, г. Санкт-Петербург, наб. реки Мойки, 48.
recastro@mail.ru

ЖУРАВЛЕВ Дмитрий Александрович — аспирант кафедры физической электроники факультета физики Российского государственного педагогического университета им. А.И. Герцена.

191186, г. Санкт-Петербург, наб. реки Мойки, 48.
superzhmur@gmail.com

УДК 517.9

С.Н. Алексеенко, Т.А. Шемякина, М.В. Донцова

**УСЛОВИЯ НЕЛОКАЛЬНОЙ РАЗРЕШИМОСТИ СИСТЕМ
ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫХ УРАВНЕНИЙ В ЧАСТНЫХ ПРОИЗВОДНЫХ
ПЕРВОГО ПОРЯДКА**

S.N. Alekseenko ¹, T.A. Shemyakina ², M.V. Dontsowa ¹

¹ Nizhny Novgorod State Technical University n.a. R.E. Alekseev
24 Minina St., Nizhny Novgorod, 603950, Russia.

² St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

**NONLOCAL RESOLVABILITY CONDITIONS FOR SYSTEMS OF THE FIRST
ORDER PARTIAL DIFFERENTIAL EQUATIONS**

Получены условия нелокальной разрешимости задачи Коши для системы двух квазилинейных дифференциальных уравнений с частными производными первого порядка. Исследование рассмотренной задачи основано на методе дополнительного аргумента.

КВАЗИЛИНЕЙНЫЕ ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫЕ УРАВНЕНИЯ С ЧАСТНЫМИ ПРОИЗВОДНЫМИ ПЕРВОГО ПОРЯДКА, ЗАДАЧА КОШИ, МЕТОД ДОПОЛНИТЕЛЬНОГО АРГУМЕНТА.

Conditions of a nonlocal resolvability of the Cauchy problem for a system of two quasilinear first order partial differential equations are received. The investigation of the considered problem is based on the method of an additional argument.

QUASILINEAR FIRST ORDER PARTIAL DIFFERENTIAL EQUATIONS, CAUCHY PROBLEM, METHOD OF ADDITIONAL ARGUMENT.

Системы нелинейных дифференциальных уравнений в частных производных описывают различные задачи из физики и механики, например, при описании распределения электронов в электрическом поле спрайта, при описании нестационарного течения идеального газа и т. п. [1]. Поэтому изучение общих свойств нелинейных уравнений и методов их решения актуальны в современной математике.

Наиболее изучены системы линейных и квазилинейных уравнений. Однако даже для систем квазилинейных уравнений нет достаточно полной теории, нет общих теорем су-

ществования и единственности решения задачи Коши, а также универсальных методов решения любых дифференциальных уравнений в частных производных первого порядка. Каждый из известных методов хорошо применим к определенному классу уравнений. Если обратиться к методу характеристик, то условием разрешимости исходной задачи является условие существования обратной функции для характеристического уравнения. Нахождение обратной функции в общем случае представляет собой, как правило, более сложную проблему, чем исходная задача. Поэтому ее не решают,



а принимают допустимость обратного преобразования переменных в качестве условия [1]. Многие известные теоремы говорят о существовании и единственности решения для очень короткого промежутка времени, то есть имеют локальный характер и не дают ответа на явное определение границ интервала существования гладкого ограниченного решения и нахождение вида решения в исходных переменных.

Для преодоления отмеченных трудностей был предложен метод дополнительного аргумента (МДА). В работах М.И. Иманалиева, С.Н. Алексеенко [2, 3] метод дополнительного аргумента позволил исследовать вопросы разрешимости начальной задачи для одного уравнения и систем уравнений типа Уизема. В работе [4] исследовано уравнение в частных производных первого порядка. Во всех этих работах исследовались системы уравнений с одним характеристическим направлением.

В статье [5] разработан способ применения метода дополнительного аргумента к системам дифференциальных уравнений первого порядка с разными характеристическими направлениями. В работе [6] описано, как можно применять метод дополнительного аргумента, если система уравнений произвольного вида с двумя независимыми переменными приводится к системе, называемой характеристической формой (когда в каждое уравнение входят производные только от одной неизвестной функции) с помощью инвариантов Римана.

В работах [7 – 15] разработан принципиально новый способ применения метода дополнительного аргумента к изучению системы Франкля в гиперболическом и эллиптическом случаях. В работах [9 – 12] построены новые расширенные характеристические системы для изучения системы Франкля. В статьях [11, 12] была доказана теорема локального существования гладкого ограниченного решения задачи Коши для системы Франкля гиперболического типа с новой расширенной характеристической системой. В статьях [13, 14] были построены примеры некоторых вариантов системы Франкля в гиперболическом и эллиптическом случаях, когда решение было найдено в явном аналитическом виде через W -функцию Ламберта.

Численные эксперименты проводились для модельных примеров, а также для частного случая системы Франкля, когда она имела явное физическое содержание [15].

Во всех вышеперечисленных работах не были определены условия нелокальной разрешимости задачи Коши для системы дифференциальных уравнений с разными характеристическими направлениями. Поэтому в настоящей работе исследуется эта проблема.

Постановка задачи

Рассмотрим систему дифференциальных уравнений в частных производных первого порядка:

$$\begin{cases} \partial_t u(t, x) + (au(t, x) + bv(t, x))\partial_x u(t, x) = 0; \\ \partial_t v(t, x) + (cu(t, x) + gv(t, x))\partial_x v(t, x) = 0, \end{cases} \quad (1)$$

где

$$(t, x) \in \Omega := [0, T] \times (-\infty, \infty);$$

a, b, c, g, T — известные положительные константы; $u(t, x), v(t, x)$ — неизвестные функции.

Система уравнений (1) представляет собой результат первого этапа преобразования системы Франкля для применения метода дополнительного аргумента.

Поставим для системы уравнений (1) задачу Коши:

$$u(0, x) = \varphi(x), v(0, x) = \psi(x), x \in (-\infty, \infty), \quad (2)$$

где $\varphi(x), \psi(x)$ — известные функции, удовлетворяющие условию:

$$\varphi'(x) \geq 0, \psi'(x) \geq 0. \quad (3)$$

Согласно методу дополнительного аргумента, запишем расширенную характеристическую систему:

$$\begin{cases} \frac{d\eta_1(s, t, x)}{ds} = aw_1(s, t, x) + bw_3(s, t, x); \\ \frac{d\eta_2(s, t, x)}{ds} = cw_4(s, t, x) + gw_2(s, t, x); \\ \frac{dw_1(s, t, x)}{ds} = 0; \\ \frac{dw_2(s, t, x)}{ds} = 0; \end{cases}$$

$$w_1(0, t, x) = \varphi(\eta_1(0, t, x));$$

$$w_2(0, t, x) = \psi(\eta_2(0, t, x));$$

$$w_3(s, t, x) = w_2(s, s, \eta_1);$$

$$w_4(s, t, x) = w_1(s, s, \eta_2).$$

В результате преобразований система уравнений примет вид:

$$\begin{cases} \eta_1(s, t, x) = x - a(t-s)u - b \int_s^t w_3(\tau, t, x) d\tau; \\ \eta_2(s, t, x) = x - c \int_s^t w_4(\tau, t, x) d\tau - g(t-s)v; \\ w_1(s, t, x) = \varphi(\eta_1(0, t, x)) := u(t, x); \\ w_2(s, t, x) = \psi(\eta_2(0, t, x)) := v(t, x); \end{cases} \quad (4)$$

$$w_3(s, t, x) = w_2(s, s, \eta_1(s, t, x));$$

$$w_4(s, t, x) = w_1(s, s, \eta_2(s, t, x)).$$

В работах [5, 11, 12] доказано локальное существование гладкого ограниченного решения системы уравнений (4), которая эквивалентна задаче Коши (1), (2) согласно методу дополнительного аргумента. На основании проведенных в этих работах исследований, сформулируем соответствующую теорему.

Теорема 1. Пусть $\varphi, \psi \in \bar{C}^2(R^1)$ и выполнены условия:

$$1) a > 0, b > 0, g > 0, c > 0;$$

$$2) \varphi'(x) \geq 0, \psi'(x) \geq 0.$$

Тогда для любого $0 \leq t \leq T$ задача Коши (1), (2) имеет единственное решение

$$u(t, x) \in \bar{C}^{1,2,2}([0, T] \times R^1);$$

$$v(t, x) \in \bar{C}^{1,2,2}([0, T] \times R^1),$$

которое определяется из системы интегральных уравнений (4).

Замечания.

1. $\bar{C}^2(R^1)$ — пространство дважды непрерывно дифференцируемых функций, ограниченных вместе со своими производными на всей оси; $\bar{C}^{1,2,2}([0, T] \times R^1)$ — пространство функций, один раз дифференцируемых по переменной t , дважды дифференцируемых по переменной x . Они имеют смешанные производные второго порядка и ограничены вместе со своими производными на всей оси.

2. Доказательство теоремы 1 основано на рассмотрении последовательных приближений к решению системы уравнений (4), определяемых из системы рекуррентных уравнений:

$$\begin{cases} u^n(t, x) = \varphi(x - a(t-s)u^n - b \int_0^t w_3^n(\tau, t, x) d\tau); \\ v^n(t, x) = \psi(x - c \int_0^t w_4^n(\tau, t, x) d\tau - g(t-s)v^n); \\ \eta_1^n(s, t, x) = x - a(t-s)u^n - b \int_s^t w_3^n(\tau, t, x) d\tau; \\ \eta_2^n(s, t, x) = x - c \int_s^t w_4^n(\tau, t, x) d\tau - g(t-s)v^n; \\ w_3^n(s, t, x) = w_2^{n-1}(s, s, \eta_1^n(s, t, x)); \\ w_4^n(s, t, x) = w_1^{n-1}(s, s, \eta_2^n(s, t, x)). \end{cases}$$

В последней системе интегральных уравнений рассматриваются отдельно пары уравнений, причем для доказательства существования их решений при каждом конкретном n применяется свой метод последовательных приближений. Использование рекуррентных уравнений, а не рекуррентных соотношений связано с тем, что в уравнения системы (4) входят суперпозиции неизвестных функций. Рекуррентные уравнения дают возможность при доказательстве сходимости последовательных приближений от неизвестной функции, стоящей в качестве аргумента, брать на каждом этапе функцию от функции как известную функцию. При этом из простых оценок убеждаемся в существовании константы T_0 , определяющей интервал изменения переменной t , в котором решение задачи существует.

Для доказательства существования нелокального решения исходной задачи и вывода для него глобальных оценок, надо дополнить систему (4) двумя уравнениями.

Существование нелокального решения

Дополнительная система уравнений. Продифференцируем систему уравнений (1) по переменной x и обозначим

$$p(t, x) = u_x(t, x), \quad q(t, x) = v_x(t, x);$$

получим следующую систему уравнений:



$$\begin{cases} \partial_t p + (au + bv)\partial_x p = -ap^2 - bpq; \\ \partial_t q + (cu + gv)\partial_x q = -gq^2 - cpq; \\ p(0, x) = \varphi'(x), q(0, x) = \psi'(x). \end{cases} \quad (5)$$

Добавим к системе уравнений (4) два уравнения:

$$\begin{cases} \frac{d\gamma_1(s, t, x)}{ds} = -a\gamma_1^2(s, t, x) - \\ - b\gamma_1(s, t, x)\gamma_2(s, t, x); \\ \frac{d\gamma_2(s, t, x)}{ds} = -g\gamma_2^2(s, t, x) - \\ - c\gamma_1(s, t, x)\gamma_2(s, t, x), \end{cases} \quad (6)$$

с условиями

$$\gamma_1(0, t, x) = \varphi'(\eta_1), \gamma_2(0, t, x) = \psi'(\eta_2).$$

Перепишем систему уравнений (6) в следующем виде:

$$\begin{cases} \gamma_1(s, t, x) = \varphi'(\eta_1) - \\ - \int_0^s [a\gamma_1^2 - b\gamma_1\gamma_2(\tau, \tau, \eta_1)]d\tau; \\ \gamma_2(s, t, x) = \psi'(\eta_2) - \\ - \int_0^s [g\gamma_2^2 - c\gamma_1(\tau, \tau, \eta_2)\gamma_2]d\tau. \end{cases} \quad (7)$$

Докажем сначала существование непрерывного решения системы (7) с помощью метода последовательных приближений при выполнении условия:

$$t < \min\left(\frac{1}{10lC'_\varphi}, \frac{1}{10lC'_\psi}\right), \quad (8)$$

где

$$l := \max\{a, b, c, g\},$$

$$C'_\varphi = \sup|\varphi'(x)|, C'_\psi = \sup|\psi'(x)|.$$

Определим последовательные приближения:

$$\begin{cases} \gamma_1^{n+1}(s, t, x) = \varphi'(\eta_1) - \\ - \int_0^s [a(\gamma_1^n)^2 - b\gamma_1^n\gamma_2^n(\tau, \tau, \eta_1)]d\tau; \\ \gamma_2^{n+1}(s, t, x) = \psi'(\eta_2) - \\ - \int_0^s [g(\gamma_2^n)^2 - c\gamma_1^n(\tau, \tau, \eta_2)\gamma_2^n]d\tau, \end{cases} \quad (9)$$

при этом

$$\gamma_1^0(s, t, x) = \varphi'(\eta_1), \gamma_2^0(s, t, x) = \psi'(\eta_2).$$

Путем непосредственных оценок получаем:

$$\begin{cases} |\gamma_1^1| \leq C'_\varphi + lt(C_\varphi'^2 + C'_\varphi C'_\psi) \leq \\ \leq \left(1 + \frac{1}{10} + \frac{1}{10}\right) = 1, 2C'_\varphi; \\ |\gamma_2^1| \leq C'_\psi + lt(C_\psi'^2 + C'_\varphi C'_\psi) \leq 1, 2C'_\psi. \end{cases}$$

Пусть

$$|\gamma_1^n| \leq 1, 4C'_\varphi; |\gamma_2^n| \leq 1, 4C'_\psi; \quad (10)$$

тогда для последовательных приближений (9) следуют оценки:

$$\begin{aligned} |\gamma_1^{n+1}| &\leq C'_\varphi + lt(1, 96C_\varphi'^2 + 1, 96C'_\varphi C'_\psi) \leq \\ &\leq C'_\varphi + \left(\frac{1, 96}{10} + \frac{1, 96}{10}\right) C'_\varphi < 1, 4C'_\varphi; \end{aligned}$$

$$|\gamma_2^{n+1}| \leq C'_\psi + lt(1, 96C_\psi'^2 + 1, 96C'_\varphi C'_\psi) < 1, 4C'_\psi.$$

Это означает, что неравенства (10) справедливы при всех n .

Докажем сходимость последовательных приближений (9). Рассмотрим неравенства:

$$\begin{aligned} |\gamma_1^{n+1} - \gamma_1^n| &\leq \left| \int_0^s [a((\gamma_1^n)^2 - (\gamma_1^{n-1})^2) + b(\gamma_1^n\gamma_2^n - \right. \\ &- \gamma_1^{n-1}\gamma_2^{n-1})]d\tau \leq lt(\|\gamma_1^n + \gamma_1^{n-1}\| \cdot \|\gamma_1^n - \gamma_1^{n-1}\| + \\ &+ \|\gamma_1^n - \gamma_1^{n-1}\| \cdot \|\gamma_2^n\| + \|\gamma_2^n - \gamma_2^{n-1}\| \cdot \|\gamma_1^{n-1}\|) \leq \\ &\leq 1, 4lt[(2C'_\varphi + C'_\psi)\|\gamma_1^n - \gamma_1^{n-1}\| + C'_\varphi\|\gamma_2^n - \gamma_2^{n-1}\|], \\ |\gamma_1^{n+1} - \gamma_1^n| &\leq \frac{4, 2}{10}\|\gamma_1^n - \gamma_1^{n-1}\| + \frac{1, 4}{10}\|\gamma_2^n - \gamma_2^{n-1}\|. \end{aligned}$$

Аналогично получаем оценки для второй функции:

$$\begin{aligned} |\gamma_2^{n+1} - \gamma_2^n| &\leq \left| \int_0^s [g((\gamma_2^n)^2 - (\gamma_2^{n-1})^2) + c(\gamma_1^n\gamma_2^n - \right. \\ &- \gamma_1^{n-1}\gamma_2^{n-1})]d\tau \leq lt(\|\gamma_2^n + \gamma_2^{n-1}\| \cdot \|\gamma_2^n - \gamma_2^{n-1}\| + \\ &+ \|\gamma_1^n - \gamma_1^{n-1}\| \cdot \|\gamma_2^{n-1}\| + \|\gamma_2^n - \gamma_2^{n-1}\| \cdot \|\gamma_1^{n-1}\|) \leq \\ &\leq 1, 4lt[(2C'_\psi + C'_\varphi)\|\gamma_2^n - \gamma_2^{n-1}\| + C'_\psi\|\gamma_1^n - \gamma_1^{n-1}\|], \\ |\gamma_2^{n+1} - \gamma_2^n| &\leq \frac{4, 2}{10}\|\gamma_2^n - \gamma_2^{n-1}\| + \frac{1, 4}{10}\|\gamma_1^n - \gamma_1^{n-1}\|. \end{aligned}$$

Сложим последние неравенства и в результате получим:

$$\begin{aligned} & \|\gamma_1^{n+1} - \gamma_1^n\| + \|\gamma_2^{n+1} - \gamma_2^n\| \leq \\ & \leq \frac{5,6}{10} [\|\gamma_1^n - \gamma_1^{n-1}\| + \|\gamma_2^n - \gamma_2^{n-1}\|]. \end{aligned}$$

Таким образом, приходим к выводу, что последовательные приближения (9) сходятся к непрерывному решению системы (7). Для решения будут справедливы оценки:

$$|\gamma_1| \leq 1, 4C'_\varphi, |\gamma_2| \leq 1, 4C'_\psi.$$

Для системы (7) осталось доказать существование производных по t и x .

Существование производной по переменной x . Продифференцируем по переменной x последовательные приближения (9):

$$\begin{cases} \gamma_{1x}^{n+1}(s, t, x) = \varphi''(\eta_1)\eta_{1x} - \int_0^s [2a\gamma_1^n\gamma_{1x}^n + \\ + b\gamma_{1x}^n\gamma_2^n(\tau, \tau, \eta_1) + b\gamma_1^n\gamma_{2x}^n(\tau, \tau, \eta_1)\eta_{1x}]d\tau; \\ \gamma_{2x}^{n+1}(s, t, x) = \psi''(\eta_2)\eta_{2x} - \int_0^s [2g\gamma_2^n\gamma_{2x}^n + \\ + c\gamma_{1x}^n(\tau, \tau, \eta_2)\gamma_2^n\eta_{2x} + c\gamma_1^n(\tau, \tau, \eta_2)\gamma_{2x}^n]d\tau. \end{cases} \quad (11)$$

$$\begin{cases} \eta_{1x}(s, t, x) = 1 - a(t-s)u_x - b \int_s^t w_{3x}d\tau; \\ \eta_{2x}(s, t, x) = 1 - c \int_s^t w_{4x}d\tau - g(t-s)v_x. \end{cases}$$

Тогда при выполнении условия (3) получим неравенства:

$$|\eta_{1x}| \leq 1, |\eta_{2x}| \leq 1.$$

Пусть выполнены неравенства

$$\|\gamma_{1x}^n\| < 2, 3C''; \|\gamma_{2x}^n\| < 2, 3C'',$$

где $C'' = \max\{C'_\varphi, C'_\psi\}$.

При выполнении условия (8) получаем оценки:

$$\begin{aligned} |\gamma_{1x}^{n+1}| & \leq C'' + 1, 4lt(2C'_\varphi + C'_\psi)2, 3C'' + \\ & + 1, 4ltC'_\varphi 2, 3C'' \leq C'' + \frac{4,2}{10} 2, 3C'' + \\ & + \frac{1,4}{10} 2, 3C'' = \frac{22,88}{10} C'', \\ |\gamma_{2x}^{n+1}| & \leq C'' + 1, 4lt(3C'_\psi + C'_\varphi)2, 3C'' \leq \frac{22,88}{10} C'', \end{aligned}$$

откуда выполняются неравенства:

$$\|\gamma_{1x}^{n+1}\| \leq \frac{22,88}{10} C'', \|\gamma_{2x}^{n+1}\| \leq \frac{22,88}{10} C''. \quad (12)$$

Таким образом, неравенства (12) справедливы при всех n .

Рассмотрим систему уравнений:

$$\begin{cases} \omega_{21} = \varphi''(\eta_1)\eta_{1x} - \int_0^s [2a\gamma_1\omega_{21} + \\ + b\omega_{21}\gamma_2(\tau, \tau, \eta_1) + b\gamma_1\omega_{22}(\tau, \tau, \eta_1)\eta_{1x}]d\tau, \\ \omega_{22} = \psi''(\eta_2)\eta_{2x} - \int_0^s [2g\gamma_2\omega_{22} + \\ + c\gamma_1(\tau, \tau, \eta_2)\omega_{22} + c\omega_{21}(\tau, \tau, \eta_2)\gamma_2\eta_{2x}]d\tau. \end{cases} \quad (13)$$

Докажем существование непрерывного решения системы (13) с помощью метода последовательных приближений:

$$\begin{cases} \omega_{21}^{n+1} = \varphi''(\eta_1)\eta_{1x} - \int_0^s [2a\gamma_1\omega_{21}^n + \\ + b\omega_{21}^n\gamma_2(\tau, \tau, \eta_1) + b\gamma_1\omega_{22}^n(\tau, \tau, \eta_1)\eta_{1x}]d\tau; \\ \omega_{22}^{n+1} = \psi''(\eta_2)\eta_{2x} - \int_0^s [2g\gamma_2\omega_{22}^n + \\ + c\gamma_1(\tau, \tau, \eta_2)\omega_{22}^n + c\omega_{21}^n(\tau, \tau, \eta_2)\gamma_2\eta_{2x}]d\tau. \end{cases}$$

Пусть выполнены неравенства

$$\|\omega_{21}^n\| < 2, 3C'', \|\omega_{22}^n\| < 2, 3C''.$$

При выполнении условия (8) получаем:

$$\begin{aligned} |\omega_{21}^{n+1}| & \leq C'' + lt(2, 8C'_\varphi + 1, 4C'_\psi + 1, 4C'_\varphi)2, 3C'' \leq \\ & \leq C'' + \left(\frac{2,8}{10} + \frac{1,4}{10} + \frac{1,4}{10}\right)2, 3C'' = \\ & = \frac{22,88}{10} C'' < 2, 3C'', \\ \|\omega_{21}^{n+1}\| & < 2, 3C''. \end{aligned}$$

Аналогично, имеем: $\|\omega_{22}^{n+1}\| \leq 2, 3C''$.

При выполнении условия (8) получаем:

$$\begin{aligned} |\omega_{21}^{n+1} - \omega_{21}^n| & \leq l \int_0^s [(2|\gamma_1| + |\gamma_2|)|\omega_{21}^n - \omega_{21}^{n-1}| + \\ & + |\gamma_1| \cdot |\omega_{22}^n(\tau, \tau, \eta_1) - \omega_{22}^{n-1}(\tau, \tau, \eta_1)|]d\tau \leq \\ & \leq 1, 4lt[(2C'_\varphi + C'_\psi)\|\omega_{21}^n - \omega_{21}^{n-1}\| + C'_\varphi\|\omega_{22}^n - \omega_{22}^{n-1}\|] \leq \\ & \leq \frac{4,2}{10}\|\omega_{21}^n - \omega_{21}^{n-1}\| + \frac{1,4}{10}\|\omega_{22}^n - \omega_{22}^{n-1}\|; \\ \|\omega_{21}^{n+1} - \omega_{21}^n\| & \leq 0, 42\|\omega_{21}^n - \omega_{21}^{n-1}\| + 0, 14\|\omega_{22}^n - \omega_{22}^{n-1}\|, \end{aligned}$$



и аналогично имеем:

$$\|\omega_{22}^{n+1} - \omega_{22}^n\| \leq 0,42 \|\omega_{22}^n - \omega_{22}^{n-1}\| + 0,14 \|\omega_{21}^n - \omega_{21}^{n-1}\|.$$

Сложим последние неравенства и в результате имеем:

$$\begin{aligned} & \|\omega_{21}^{n+1} - \omega_{21}^n\| + \|\omega_{22}^{n+1} - \omega_{22}^n\| \leq \\ & \leq 0,56(\|\omega_{21}^n - \omega_{21}^{n-1}\| + \|\omega_{22}^n - \omega_{22}^{n-1}\|). \end{aligned}$$

Это означает, что последовательные приближения сходятся, т. е. система (13) имеет непрерывное решение.

Докажем сходимость последовательных приближений, определяемых системой рекуррентных соотношений (11). Рассмотрим соотношения:

$$\begin{aligned} \|\gamma_{1x}^{n+1} - \omega_{21}\| & \leq \left| \int_0^s [2a\gamma_{1x}^n \gamma_{1x}^n + b\gamma_{1x}^n \gamma_2^n(\tau, \tau, \eta_1) + \right. \\ & + b\gamma_{1x}^n \gamma_{2x}^n(\tau, \tau, \eta_1)\eta_{1x} - 2a\gamma_{1x} \omega_{21} - b\gamma_2(\tau, \tau, \eta_1)\omega_{21} - \\ & - b\gamma_1 \omega_{22}(\tau, \tau, \eta_1)\eta_{1x}] d\tau \left| \leq \left| \int_0^s [2a\gamma_{1x}(\gamma_{1x}^n - \omega_{21}) + \right. \right. \\ & + b\gamma_2^n(\tau, \tau, \eta_1)(\gamma_{1x}^n - \omega_{21}) + \\ & + b\gamma_1(\gamma_{2x}^n(\tau, \tau, \eta_1) - \omega_{22}(\tau, \tau, \eta_1))\eta_{1x}] d\tau \left| + |\sigma_{31}^n|, \end{aligned}$$

где

$$\begin{aligned} \sigma_{31}^n & = \int_0^s [(2a\gamma_{1x}^n + b\gamma_{2x}^n \eta_{1x})(\gamma_{1x}^n - \gamma_{1x}) + \\ & + b\gamma_{1x}^n(\gamma_2^n - \gamma_2)] d\tau. \end{aligned}$$

При выполнении условия (8) выведем неравенство:

$$\begin{aligned} \|\gamma_{1x}^{n+1} - \omega_{21}\| & \leq \frac{1,4}{10} [3 \|\gamma_{1x}^n - \omega_{21}\| + \\ & + \|\gamma_{2x}^n - \omega_{22}\|] + |\sigma_{31}^n|. \end{aligned}$$

Аналогично получаем:

$$\begin{aligned} \|\gamma_{2x}^{n+1} - \omega_{22}\| & \leq \frac{1,4}{10} [3 \|\gamma_{2x}^n - \omega_{22}\| + \\ & + \|\gamma_{1x}^n - \omega_{21}\|] + |\sigma_{41}^n|. \end{aligned}$$

Сложим последние неравенства и в результате получим:

$$\begin{aligned} & \|\gamma_{1x}^{n+1} - \omega_{21}\| + \|\gamma_{2x}^{n+1} - \omega_{22}\| \leq \\ & \leq 0,56(\|\gamma_{1x}^n - \omega_{21}\| + \|\gamma_{2x}^n - \omega_{22}\|) + |\sigma_{31}^n| + |\sigma_{41}^n|. \end{aligned}$$

Пользуясь равномерной сходимостью $\gamma_1^n \Rightarrow \gamma_1, \gamma_2^n \Rightarrow \gamma_2$, выберем $n = N$ так, чтобы $|\sigma_{31}^n| + |\sigma_{41}^n| < \varepsilon$.

Обозначим

$$S_{1N} := \|\gamma_{1x}^N - \omega_{21}\| + \|\gamma_{2x}^N - \omega_{22}\|,$$

тогда имеем:

$$\begin{aligned} & \|\gamma_{1x}^{N+1} - \omega_{21}\| + \|\gamma_{2x}^{N+1} - \omega_{22}\| \leq 0,56S_{1N} + \varepsilon; \\ & \|\gamma_{1x}^{N+p} - \omega_{21}\| + \|\gamma_{2x}^{N+p} - \omega_{22}\| \leq \left(\frac{5,6}{10}\right)^p S_{1N} + \\ & + (1 + 0,56 + \dots + (0,56)^{p-1})\varepsilon < \\ & < (0,56)^p S_{1N} + \frac{1}{0,44} \varepsilon. \end{aligned}$$

Таким образом,

$$\|\gamma_{1x}^{N+p} - \omega_{21}\| + \|\gamma_{2x}^{N+p} - \omega_{22}\| \rightarrow 0$$

при $N \rightarrow \infty, p \rightarrow \infty$.

А значит, последовательности $\{\gamma_{1x}^n\}, \{\gamma_{2x}^n\}$ сходятся, т. е.

$$\lim_{n \rightarrow \infty} \gamma_{1x}^n = \omega_{21}, \lim_{n \rightarrow \infty} \gamma_{2x}^n = \omega_{22}.$$

Тем самым доказано существование непрерывных производных решения системы (7):

$$\begin{aligned} \gamma_{1x} & = \frac{\partial \gamma_1}{\partial x} = \omega_{21}, \gamma_{2x} = \frac{\partial \gamma_2}{\partial x} = \omega_{22}, \\ \|\gamma_{1x}\| & < 2,3C'', \quad \|\gamma_{2x}\| < 2,3C''. \end{aligned}$$

Существование производной по переменной t . Продифференцируем по переменной t систему уравнений (7):

$$\begin{cases} \gamma_{1t} = \varphi''(\eta_1)\eta_{1t} - \int_0^s [2a\gamma_{1t}\gamma_{1t} + \\ + b\gamma_{1t}\gamma_2(\tau, \tau, \eta_1) + b\gamma_1\gamma_{2x}(\tau, \tau, \eta_1)\eta_{1t}] d\tau; \\ \gamma_{2t} = \psi''(\eta_2)\eta_{2t} - \int_0^s [2g\gamma_{2t}\gamma_{2t} + \\ + c\gamma_1(\tau, \tau, \eta_2)\gamma_{2t} + c\gamma_{1x}(\tau, \tau, \eta_2)\gamma_2\eta_{2t}] d\tau; \end{cases} \quad (14)$$

$$\begin{cases} \frac{\partial \gamma_{1t}}{\partial s} = -(2a\gamma_1 + b\gamma_2)\gamma_{1t} - b\gamma_1\gamma_{2x}\eta_{1t}; \\ \frac{\partial \gamma_{2t}}{\partial s} = -(2g\gamma_2 + c\gamma_1)\gamma_{2t} - c\gamma_{1x}\gamma_2\eta_{2t}, \end{cases}$$

с условиями

$$\gamma_{1t}(0, t, x) = \varphi''(\eta_1)\eta_{1t}; \quad \gamma_{2t}(0, t, x) = \psi''(\eta_2)\eta_{2t}.$$

Тогда имеем:

$$\begin{aligned}\gamma_{1t} &= \varphi''(\eta_1)\eta_{1t} e^{-\int_0^s (2a\gamma_1 + b\gamma_2(\tau, \tau, \eta_1))d\tau} - \\ &- \int_0^s b\gamma_1\gamma_{2x}(\tau, \tau, \eta_1)\eta_{1t} e^{-\int_\tau^s (2a\gamma_1 + b\gamma_2(\tau, \tau, \eta_1))d\xi} d\tau; \\ \gamma_{2t} &= \psi''(\eta_2)\eta_{2t} e^{-\int_0^s (2g\gamma_2 + c\gamma_1(\tau, \tau, \eta_2))d\tau} - \\ &- \int_0^s c\gamma_{1x}(\tau, \tau, \eta_2)\gamma_2\eta_{2t} e^{-\int_\tau^s (2g\gamma_2 + c\gamma_1(\tau, \tau, \eta_2))d\xi} d\tau.\end{aligned}$$

Следовательно, существуют функции γ_{1t}, γ_{2t} , удовлетворяющие системе (14).

Продифференцировав по переменной t последовательные приближения (9), докажем сходимость $\gamma_{1t}'' \rightarrow \gamma_{1t}, \gamma_{2t}'' \rightarrow \gamma_{2t}$, тем самым установим, что

$$\gamma_{1t} = \frac{\partial \gamma_1}{\partial t}, \quad \gamma_{2t} = \frac{\partial \gamma_2}{\partial t}.$$

Итак, мы доказали существование непрерывно дифференцируемого решения задачи (6). Это означает, что

$$\begin{aligned}\gamma_1(t, t, x) &= p(t, x) = \frac{\partial u}{\partial x}; \\ \gamma_2(t, t, x) &= q(t, x) = \frac{\partial v}{\partial x}.\end{aligned}$$

Вывод глобальных оценок

Для указанного вывода отметим, что из системы уравнений (4) следуют оценки:

$$\|u(t, x)\| \leq C_\varphi; \quad \|v(t, x)\| \leq C_\psi. \quad (15)$$

Далее, из системы (7) имеем:

$$\begin{cases} \gamma_1(s, t, x) = \varphi'(\eta_1) e^{-\int_0^s (a\gamma_1 + b\gamma_2(\tau, \tau, \eta_1))d\tau}; \\ \gamma_2(s, t, x) = \psi'(\eta_2) e^{-\int_0^s (g\gamma_2 + c\gamma_1(\tau, \tau, \eta_2))d\tau}. \end{cases}$$

При выполнении условия (3) получаем:

$$\|\gamma_1\| \leq C'_\varphi; \quad \|\gamma_2\| \leq C'_\psi,$$

следовательно,

$$\left\| \frac{\partial u}{\partial x} \right\| \leq C'_\varphi, \quad \left\| \frac{\partial v}{\partial x} \right\| \leq C'_\psi. \quad (16)$$

Для продолжения решения осталось получить нелокальные оценки для функций

$$\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} = \frac{\partial p}{\partial x}, \quad \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} = \frac{\partial q}{\partial x}.$$

Дифференцируем систему уравнений (7) по переменной x , получаем:

$$\begin{cases} \frac{d\gamma_{1x}}{ds} = -2a\gamma_1\gamma_{1x} - b\gamma_2(s, s, \eta_1)\gamma_{1x} - \\ - b\gamma_1\gamma_{2x}(s, s, \eta_1)\eta_{1x}; \\ \frac{d\gamma_{2x}}{ds} = -2g\gamma_2\gamma_{2x} - c\gamma_1(s, s, \eta_2)\gamma_{2x} - \\ - c\gamma_{1x}(s, s, \eta_2)\gamma_2\eta_{2x}, \end{cases} \quad (17)$$

с условиями

$$\gamma_{1x}(0, t, x) = \varphi''(\eta_1)\eta_{1x}, \quad \gamma_{2x}(0, t, x) = \psi''(\eta_2)\eta_{2x}.$$

Обозначив

$$A_{11} := 2a\gamma_1 + -\gamma_2(s, s, \eta_1); \quad A_{12} := b\gamma_1\eta_{1x};$$

$$A_{22} := 2g\gamma_2 + c\gamma_1(s, s, \eta_2); \quad A_{21} := c\gamma_2\eta_{2x},$$

получим систему уравнений:

$$\begin{cases} \frac{d\gamma_{1x}}{ds} = -A_{11}\gamma_{1x}(s, t, x) - A_{12}\gamma_{2x}(s, s, \eta_1); \\ \frac{d\gamma_{2x}}{ds} = -A_{21}\gamma_{2x}(s, t, x) - A_{22}\gamma_{1x}(s, s, \eta_2). \end{cases} \quad (18)$$

Здесь $A_{11} > 0, A_{22} > 0$, поэтому из системы уравнений (18) следует, что

$$\begin{aligned}\gamma_{1x}(s, t, x) &= \varphi''(\eta_1)\eta_{1x} e^{-\int_0^s A_{11}d\tau} - \\ &- \int_0^s A_{12} e^{-\int_\tau^s A_{11}d\xi} \gamma_{2x}(\tau, \tau, \eta_1) d\tau; \\ \gamma_{2x}(s, t, x) &= \psi''(\eta_2)\eta_{2x} e^{-\int_0^s A_{22}d\tau} - \\ &- \int_0^s A_{21} e^{-\int_\tau^s A_{22}d\xi} \gamma_{1x}(\tau, \tau, \eta_2) d\tau.\end{aligned}$$

Поскольку

$$|\psi''(\eta_2)\eta_{2x}| \leq E_{21}, \quad |A_{21}| \leq C_{21},$$

имеем:

$$\begin{aligned}|\gamma_{2x}(s, t, x)| &\leq E_{21} + C_{21} \int_0^s |\gamma_{1x}(\tau, \tau, \eta_2)| d\tau; \\ |\gamma_{2x}(t, t, x)| &\leq E_{21} + C_{21} \int_0^t |\gamma_{1x}(\tau, \tau, \eta_2)| d\tau; \\ |\gamma_{2x}(t, t, x)| &\leq E_{21} + C_{21} \int_0^t \sup_x |\gamma_{1x}(\tau, \tau, x)| d\tau; \\ \sup_x |\gamma_{2x}(t, t, x)| &\leq E_{21} + C_{21} \int_0^t \sup_x |\gamma_{1x}(\tau, \tau, x)| d\tau.\end{aligned}$$

Аналогично получаем неравенства для производной первой функции. Поскольку

$$|\varphi''(\eta_1)\eta_{1x}| \leq E_{11}, |A_{12}| \leq C_{12},$$

имеем:

$$|\gamma_{1x}(t, t, x)| \leq E_{11} + C_{12} \int_0^t |\gamma_{2x}(\tau, \tau, \eta_1)| d\tau;$$

$$|\gamma_{1x}(t, t, x)| \leq E_{11} + C_{12} \int_0^t |\gamma_{2x}(\tau, \tau, \eta_1)| d\tau;$$

$$|\gamma_{1x}(t, t, x)| \leq E_{11} + C_{12} \int_0^t \sup_x |\gamma_{2x}(\tau, \tau, x)| d\tau;$$

$$\sup_x |\gamma_{1x}(t, t, x)| \leq E_{11} + C_{12} \int_0^t \sup_x |\gamma_{2x}(\tau, \tau, x)| d\tau.$$

В связи с тем, что

$$\sup_x |\gamma_{2x}(t, t, x)| \leq E_{21} + C_{21} \int_0^t \sup_x |\gamma_{1x}(\tau, \tau, x)| d\tau,$$

имеем

$$\sup_x |\gamma_{1x}(t, t, x)| \leq E_{11} + C_{12} \int_0^t E_{21} d\tau +$$

$$+ C_{12} C_{21} \int_0^t \int_0^\tau \sup_x |\gamma_{1x}(\xi, \xi, x)| d\xi d\tau;$$

$$\sup_R |\gamma_{1x}(t, t, x)| \leq E_{11} + C_{12} t E_{21} +$$

$$+ C_{12} C_{21} \int_0^t \int_0^\tau \sup_x |\gamma_{1x}(\xi, \xi, x)| d\xi d\tau.$$

Докажем для этого неравенства аналог леммы Гронуолла:

$$z(t) \leq E_{11} + C_{12} E_{21} t + C_{12} C_{21} \int_0^t \int_0^\tau z(\xi) d\xi d\tau.$$

Обозначим

$$V(t) = E_{11} + C_{12} E_{21} t + C_{12} C_{21} \int_0^t \int_0^\tau z(\xi) d\xi d\tau,$$

тогда $z(t) \leq V(t)$.

Находим первую и вторую производную функции $V(t)$:

$$V'(t) = C_{12} E_{21} + C_{12} C_{21} \int_0^t z(\tau) d\tau;$$

$$V''(t) = C_{12} C_{21} z(t); \quad V''(t) \leq C_{12} C_{21} V(t);$$

$$V(0) = E_{11}, \quad V'(0) = C_{12} E_{21}.$$

Введем замену:

$$V(t) = \tilde{z}(t) e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}},$$

тогда

$$V'(t) = (\tilde{z}'(t) - \tilde{z}(t)\sqrt{C_{12}C_{21}}) e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}};$$

$$V''(t) = (\tilde{z}''(t) - 2\tilde{z}'(t)\sqrt{C_{12}C_{21}} + \tilde{z}(t)C_{12}C_{21}) e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}}.$$

Поскольку

$$V''(t) \leq C_{12} C_{21} V(t),$$

$$\tilde{z}''(t) e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}} - 2\tilde{z}'(t)\sqrt{C_{12}C_{21}} e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}} + C_{12} C_{21} \tilde{z}(t) e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}} \leq C_{12} C_{21} \tilde{z}(t) e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}};$$

$$\tilde{z}''(t) \leq 2\sqrt{C_{12}C_{21}} \tilde{z}'(t);$$

$$\tilde{z}'(0) \leq C_{12} E_{21} + E_{11} \sqrt{C_{12}C_{21}};$$

$$\frac{d\tilde{z}'}{\tilde{z}'} \leq 2\sqrt{C_{12}C_{21}} dt.$$

Проинтегрируем обе части последнего неравенства, получим:

$$\ln |\tilde{z}'(t)| - \ln |\tilde{z}'(0)| \leq 2t\sqrt{C_{12}C_{21}},$$

следовательно,

$$|\tilde{z}'(t)| \leq |\tilde{z}'(0)| e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}},$$

то есть

$$-\tilde{z}'(0) e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}} \leq \tilde{z}'(t) \leq \tilde{z}'(0) e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}};$$

$$\tilde{z}(t) - \tilde{z}(0) \leq \int_0^t \tilde{z}'(0) e^{2\tau\sqrt{C_{12}C_{21}}} d\tau;$$

$$\tilde{z}(t) \leq \tilde{z}(0) + \frac{\tilde{z}'(0)}{2\sqrt{C_{12}C_{21}}} (e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}} - 1).$$

Поскольку

$$V(t) = \tilde{z}(t) e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}};$$

$$\tilde{z}'(0) = C_{12} E_{21} + E_{11} \sqrt{C_{12}C_{21}},$$

то

$$V(t) \leq E_{11} e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}} + (e^{t\sqrt{C_{12}C_{21}}} - e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}}) \frac{1}{2} \left(\sqrt{\frac{C_{12}}{C_{21}}} E_{21} + E_{11} \right),$$

$$V(t) \leq E_{11} \operatorname{ch}(t\sqrt{C_{12}C_{21}}) +$$

$$+ E_{21} \sqrt{\frac{C_{12}}{C_{21}}} \operatorname{sh}(t\sqrt{C_{12}C_{21}}).$$

В связи с тем, что

$$\sup_R |\gamma_{1x}(t, t, x)| = \sup_R |p_x(t, x)| = \sup_R \left| \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right| \leq V(t),$$

получим требуемую оценку:

$$\left| \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right| < E_{11} \operatorname{ch}(t\sqrt{C_{12}C_{21}}) + E_{21}\sqrt{\frac{C_{12}}{C_{21}}}\operatorname{sh}(t\sqrt{C_{12}C_{21}}), \quad (19)$$

справедливую при всех значениях переменных t, x .

Аналогично повторим все рассуждения для функции γ_{2x} . Из системы уравнений (18) следует, что

$$\gamma_{2x}(s, t, x) = \psi''(\eta_2)\eta_{2x}e^{-\int_0^s A_{22}d\tau} - \int_0^s A_{21}e^{-\int_\tau^s A_{22}d\xi} \gamma_{1x}(\tau, \tau, \eta_2)d\tau.$$

Поскольку

$$|\psi''(\eta_2)\eta_{2x}| \leq E_{21}, |A_{21}| \leq C_{21},$$

получаем:

$$|\gamma_{2x}(t, t, x)| \leq E_{21} + C_{21} \int_0^t \sup_R |\gamma_{1x}(\tau, \tau, \eta_2)| d\tau,$$

$$\sup_R |\gamma_{2x}(t, t, x)| \leq E_{21} + C_{21} \int_0^t \sup_R |\gamma_{1x}(\tau, \tau, x)| d\tau.$$

В связи с тем, что

$$\sup_R |\gamma_{1x}(t, t, x)| \leq E_{11} + C_{12} \int_0^t \sup_R |\gamma_{2x}(\tau, \tau, x)| d\tau,$$

выполняется неравенство

$$\sup_R |\gamma_{2x}(t, t, x)| \leq E_{21} + C_{12} \int_0^t E_{11} d\tau +$$

$$+ C_{12}C_{21} \int_0^t \int_0^\tau \sup_R |\gamma_{2x}(\xi, \xi, x)| d\xi d\tau;$$

$$\sup_R |\gamma_{2x}(t, t, x)| \leq E_{21} + C_{12}tE_{11} +$$

$$+ C_{12}C_{21} \int_0^t \int_0^\tau \sup_R |\gamma_{2x}(\xi, \xi, x)| d\xi d\tau.$$

Докажем неравенство:

$$z_1(t) \leq E_{11} + C_{12}E_{11}t + C_{12}C_{21} \int_0^t \int_0^\tau z_1(\xi) d\xi d\tau.$$

Обозначим

$$V_1(t) = E_{21} + C_{12}E_{11}t + C_{12}C_{21} \int_0^t \int_0^\tau z_1(\xi) d\xi d\tau,$$

тогда $z_1(t) \leq V_1(t)$.

Находим первую и вторую производные функции $V_1(t)$:

$$V_1'(t) = C_{21}E_{21} + C_{12}C_{21} \int_0^t z_1(\tau) d\tau;$$

$$V_1''(t) = C_{12}C_{21}z_1(t); \quad V_1'''(t) \leq C_{12}C_{21}V_1(t);$$

$$V_1(0) = E_{21}; \quad V_1'(0) = C_{21}E_{11}.$$

Введем замену:

$$V_1(t) = y(t)e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}},$$

тогда

$$V_1'(t) = (y'(t) - y(t)\sqrt{C_{12}C_{21}})e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}};$$

$$V_1''(t) = (y''(t) - 2y'(t)\sqrt{C_{12}C_{21}} + y(t)C_{12}C_{21})e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}}.$$

Так как

$$V_1'''(t) \leq C_{12}C_{21}V_1(t),$$

то

$$y''(t)e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}} - 2y'(t)\sqrt{C_{12}C_{21}}e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}} + y(t)C_{12}C_{21}e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}} \leq y(t)C_{12}C_{21}e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}};$$

$$y''(t) \leq 2y'(t)\sqrt{C_{12}C_{21}}; \quad y(0) = V_1(0) = E_{21};$$

$$y'(0) = C_{12}E_{11} + E_{21}\sqrt{C_{12}C_{21}}; \quad \frac{dy'}{y'} \leq 2\sqrt{C_{12}C_{21}}dt.$$

Проинтегрируем обе части последнего неравенства, получим:

$$\ln |y'(t)| - \ln |y'(0)| \leq 2t\sqrt{C_{12}C_{21}};$$

$$|y'(t)| \leq |y'(0)|e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}};$$

$$-y'(0)e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}} \leq y'(t) \leq y'(0)e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}};$$

$$y(t) - y(0) \leq \int_0^t y'(0)e^{2s\sqrt{C_{12}C_{21}}} ds;$$

$$y(t) \leq y(0) + \frac{y'(0)}{2\sqrt{C_{12}C_{21}}}(e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}} - 1).$$

Поскольку

$$y(0) = V_1(0) = E_{21}; \quad y'(0) = C_{12}E_{11} + E_{21}\sqrt{C_{12}C_{21}},$$

то

$$y(t) \leq E_{21} + \frac{C_{12}E_{11} + E_{21}\sqrt{C_{12}C_{21}}}{2\sqrt{C_{12}C_{21}}}e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}} -$$

$$- \frac{C_{12}E_{11} + E_{21}\sqrt{C_{12}C_{21}}}{2\sqrt{C_{12}C_{21}}};$$

$$y(t) \leq \frac{E_{11}}{2} \sqrt{\frac{C_{12}}{C_{21}}} e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}} + \frac{E_{21}}{2} e^{2t\sqrt{C_{12}C_{21}}} -$$

$$- \frac{E_{11}}{2} \sqrt{\frac{C_{12}}{C_{21}}} - \frac{E_{21}}{2}.$$

Так как

$$V_1(t) = y(t)e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}},$$

то

$$\begin{aligned} V_1(t) &\leq \frac{E_{11}}{2} \sqrt{\frac{C_{12}}{C_{21}}} e^{t\sqrt{C_{12}C_{21}}} + \frac{E_{21}}{2} e^{t\sqrt{C_{12}C_{21}}} - \\ &- \frac{E_{11}}{2} \sqrt{\frac{C_{12}}{C_{21}}} e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}} - \frac{E_{21}}{2} e^{-t\sqrt{C_{12}C_{21}}}; \\ V_1(t) &\leq E_{21} \operatorname{ch}(t\sqrt{C_{12}C_{21}}) + \\ &+ E_{11} \sqrt{\frac{C_{12}}{C_{21}}} \operatorname{sh}(t\sqrt{C_{12}C_{21}}). \end{aligned}$$

В связи с тем, что

$$\sup_R |\gamma_{2x}(t, t, x)| = \sup_R |q_x(t, x)| = \sup_R \left| \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} \right| \leq V_1(t),$$

получим требуемую оценку:

$$\begin{aligned} \left| \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} \right| &< E_{21} \operatorname{ch}(t\sqrt{C_{12}C_{21}}) + \\ &+ E_{11} \sqrt{\frac{C_{12}}{C_{21}}} \operatorname{sh}(t\sqrt{C_{12}C_{21}}), \end{aligned} \quad (20)$$

справедливую при всех значениях переменных t, x .

Полученные глобальные оценки (15), (16), (19), (20) дают возможность продолжить решение на любой заданный промежуток $[0, T]$.

Возьмем в качестве начальных значений $u(T_0, x)$, $v(T_0, x)$ и продлим решение на некоторый промежуток $[T_0, T_1]$, а затем, взяв в качестве начальных значений $u(T_1, x)$, $v(T_1, x)$, продлим решение на промежуток $[T_1, T_2]$. Длина промежутка разрешимости не будет уменьшаться, так как она определяется величинами $\left\| \frac{\partial u}{\partial x} \right\|$, $\left\| \frac{\partial v}{\partial x} \right\|$, а эти величины (в силу глобальных оценок (16)) ограничены значениями C'_φ , C'_ψ на любом

промежутке разрешимости глобальными оценками, справедливыми на любом этом промежутке. В частности,

$$u(T_k, x) \in \bar{C}^2(R^1), v(T_k, x) \in \bar{C}^2(R^1),$$

$$|u(T_k, x)| \leq C_\varphi, |v(T_k, x)| \leq C_\psi,$$

$$|\partial_x u(T_k, x)| \leq C'_\varphi, |\partial_x v(T_k, x)| \leq C'_\psi.$$

Для вторых производных справедливы оценки (19), (20), где в качестве t можно взять T . В результате за конечное число шагов решение может быть продлено на любой заданный промежуток $[0, T]$.

Единственность решения задачи Коши (1), (2) доказывается применением аналогичных оценок, которые позволили установить сходимость последовательных приближений.

Общий итог исследования представим в виде следующей теоремы.

Теорема 2. Пусть $\varphi, \psi \in \bar{C}^2(R^1)$ и выполнены условия:

$$a > 0, b > 0, g > 0, c > 0;$$

$$\varphi'(x) > 0, \psi'(x) > 0.$$

Тогда для любого $T > 0$ задача Коши (1), (2) имеет единственное решение

$$u(t, x) \in \bar{C}^{1,2,2}([0, T] \times R^1),$$

$$v(t, x) \in \bar{C}^{1,2,2}([0, T] \times R^1),$$

которое определяется из системы интегральных уравнений (4).

В заключение отметим, что метод дополнительного аргумента позволил определить условия нелокальной разрешимости задачи Коши для системы дифференциальных уравнений с разными характеристическими направлениями и получить глобальные оценки для решения этой задачи.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рождественский, Б.Л. Системы квазилинейных уравнений и их приложения к газовой динамике [Текст] / Б.Л. Рождественский, Н.Н. Яненко. — М.: Наука, 1968. — 592 с.
2. Иманалиев, М.И. К теории нелинейных интегро-дифференциальных уравнений в частных производных типа Уизема [Текст] / М.И. Иманалиев, С.Н. Алексеенко // Доклады АН

СССР. — 1992. — Т. 323. — № 3. — С. 410–414.

3. Иманалиев, М.И. К теории систем нелинейных интегро-дифференциальных уравнений в частных производных типа Уизема [Текст] / М.И. Иманалиев, С.Н. Алексеенко // Доклады АН СССР. — 1992. — Т. 325. — № 6. — С. 1111–1115.
4. Иманалиев, М.И. К теории нелиней-

ных уравнений с дифференциальным оператором типа полной производной по времени [Текст] / М.И. Иманалиев, С.Н. Алексеенко // Доклады АН СССР. — 1993. — Т. 329. — № 5. — С. 543–546.

5. **Иманалиев, М.И.** К вопросу существования гладкого ограниченного решения для системы двух нелинейных дифференциальных уравнений в частных производных первого порядка [Текст] / М.И. Иманалиев, С.Н. Алексеенко // Доклады РАН. — 2001. — Т. 379. — № 1. — С. 16–21.

6. **Alekseenko, S.N.** A basic scheme to investigate two first order quasi-linear partial differential equations [Text] / S.N. Alekseenko // Analytical and Approximate Methods / H.-P. Blatt, R. Felix, L.G. Lelevkina, M. Sommer (Eds.) International Conference at the Kyrgyz–Russian–Slavic University. Bishkek – Aachen: Shaker Verlag, 2003. — P. 1–14.

7. **Алексеенко, С.Н.** Локальное существование ограниченного решения системы Франкля в гиперболическом случае [Текст] / С.Н. Алексеенко, Т.А. Шемякина, К.Г. Круц // Исследования по интегро-дифференциальным уравнениям. — Бишкек: Илим, 2006. — Вып. 35. — С. 142–147.

8. **Алексеенко, С.Н.** Локальное существование ограниченного решения системы Франкля в эллиптическом случае [Текст] / С.Н. Алексеенко, Т.А. Шемякина, В.Г. Чезганов // Исследования по интегро-дифференциальным уравнениям. — Бишкек: Илим, 2006. — Вып. 35. — С. 148–152.

9. **Алексеенко, С.Н.** Построение расширенной характеристической системы уравнений для частного случая системы Франкля эллиптического типа [Текст] / С.Н. Алексеенко, Т.А. Шемякина // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2009. — № 3 (83). — С. 73–82.

10. **Шемякина, Т.А.** Построение расширенной характеристической системы для системы Франкля в гиперболическом случае [Текст] / Т.А. Шемякина // Труды Средне-Волжского матем. об-ва: докл. III Междунар. научной школы. — Ульяновск, 2007. — Т. 9. — № 1. — С. 264–273.

11. **Шемякина, Т.А.** Условия существования и дифференцируемости решения системы Франкля в гиперболическом случае [Текст] / Т.А. Шемякина // Журнал Средне-Волжского матем. об-ва. — 2011. — Т. 13. — № 2. — С. 127–131.

12. **Шемякина, Т.А.** Теорема существования ограниченного решения задачи Коши для системы Франкля гиперболического типа [Текст] / Т.А. Шемякина // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2012. — № 2 (146). — С. 130–131.

13. **Шемякина, Т.А.** Примеры решения задачи Коши для некоторых вариантов системы Франкля эллиптического типа [Текст] / Т.А. Шемякина // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2011. — № 4 (134). — С. 191–197.

14. **Шемякина, Т.А.** Примеры решения задачи Коши для некоторых вариантов системы Франкля гиперболического типа [Текст] / Т.А. Шемякина // Материалы IX Междунар. конф. по неравновесным процессам в соплах и струях (NPNJ'2012). — Алушта. — М.: Изд-во МАИ-ПРИНТ, 2012. — С. 525–528.

15. **Шемякина, Т.А.** Численное решение задачи Коши для системы Франкля на основе метода дополнительного аргумента [Текст] / Т.А. Шемякина // Материалы XVII Междунар. конф. по вычислительной механике и современным прикладным программным системам (ВМСПС'11). — М.: Изд-во МАИ-ПРИНТ, 2011. — С. 669–672.

REFERENCES

1. **Rozhdestvenskii B.L., Yanenko N.N.** Sistemy kvazilineinykh uravnenii i ikh prilozheniia k gazovoi dinamike. Moscow, Nauka, 1968, 592 p. (rus)

2. **Imanaliev M.I., Alekseenko S.N.** K teorii nelineinykh integro-differentsial'nykh uravnenii v chastnykh proizvodnykh tipa Uizema. *Doklady AN SSSR*, 1992, Vol. 323, № 3, pp. 410–414. (rus)

3. **Imanaliev M.I., Alekseenko S.N.** K teorii sistem nelineinykh integro-differentsial'nykh uravnenii v chastnykh proizvodnykh tipa Uizema. *Doklady AN SSSR*, 1992, Vol. 325, № 6, pp. 1111–1115. (rus)

4. **Imanaliev M.I., Alekseenko S.N.** K teorii nelineinykh uravnenii s differentsial'nym operatorom tipa polnoi proizvodnoi po vremeni. *Doklady*

AN SSSR, 1993, Vol. 329, № 5, pp. 543–546. (rus)

5. **Imanaliev M.I., Alekseenko S.N.** K voprosu sushchestvovaniia gladkogo ogranichenного resheniia dlia sistemy dvukh nelineinykh differentsial'nykh uravnenii v chastnykh proizvodnykh pervogo poriadka. *Doklady RAN*, 2001, Vol. 379, № 1, pp. 16–21. (rus)

6. **Alekseenko S.N.** A basic scheme to investigate two first order quasi-linear partial differential equations. Analytical and Approximate Methods. International Conference at the Kyrgyz–Russian–Slavic University. Bishkek – Aachen, Shaker Verlag, 2003, pp. 1–14.

7. **Alekseenko S.N., Shemyakina T.A., Kruts**



K.G. Lokal'noe sushchestvovanie ogranichenogo resheniya sistemy Franklia v giperbolicheskom sluchae. Issledovaniia po integro-differentsial'nym uravneniiam, Bishkek, Ilim, 2006, № 35, pp. 142–147. (rus)

8. **Alekseenko S.N., Shemyakina T.A., Chezganov V.G.** Lokal'noe sushchestvovanie ogranichenogo resheniya sistemy Franklia v ellipticheskom sluchae. Issledovaniia po integro-differentsial'nym uravneniiam, Bishkek, Ilim, 2006, № 35, pp. 148–152. (rus)

9. **Alekseenko S.N., Shemyakina T.A.** The construction of the extended characteristic system for a special case of Frankl equations of the elliptic type. *St.-Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2009, № 3 (83), pp. 73–82. (rus)

10. **Shemyakina T.A.** Postroenie rasshirennoi kharakteristicheskoi sistemy dlia sistemy Franklia v giperbolicheskom sluchae. Trudy Sredne-Volzhskogo matem ob-va: dokl. III Mezhdunar. nauch. shkola. Ul'ianovsk, 2007, Vol. 9, № 1, pp. 264–273. (rus)

11. **Shemyakina T.A.** Usloviia sushchestvovaniia i differentsiruемости resheniya sistemy Franklia v giperbolicheskom sluchae. *Zhurnal Sredne-*

Volzhskogo matem. ob-va, 2011, Vol. 13, № 2, pp. 127–131. (rus)

12. **Shemyakina T.A.** The theorem on existence of a bounded solution of the Cauchy problem for the Frankl system of hyperbolic type. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2012, № 2 (146), pp. 130–131. (rus)

13. **Shemyakina T.A.** Solution examples of the Cauchy problem for some variants of the Frankl system of elliptic type. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2011, № 4 (134), pp. 191–197. (rus)

14. **Shemyakina T.A.** Primery resheniya zadachi Koshi dlia nekotorykh variantov sistemy Franklia giperbolicheskogo tipa. Materialy IX Mezhdunar. konf. po neravnovesnym protsessam v soplakh i struiakh (NPNJ'2012), Moscow, Izd-vo MAI-PRINT, 2012, pp. 525–528. (rus)

15. **Shemyakina T.A.** Chislennoe reshenie zadachi Koshi dlia sistemy Franklia na osnove metoda dopolnitel'nogo argumenta. Materialy XVII Mezhdunar. konf. po vychislitel'noi mekhanike i sovremennym prikladnym programnym sistemam (VMSPPS'11), Moscow: Izd-vo MAI-PRINT, 2011. pp. 669–672. (rus)

ШЕМЯКИНА Татьяна Алексеевна — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры высшей математики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
sh_tat@mail.ru

АЛЕКСЕЕНКО Сергей Николаевич — доктор физико-математических наук, профессор кафедры прикладной математики Нижегородского государственного технического университета имени Р.Е. Алексеева.

603950, г. Нижний Новгород, ул. Минина, 24
sn-alekseenko@yandex.ru

ДОНЦОВА Марина Владимировна — аспирантка Нижегородского государственного педагогического университета.

603950, г. Нижний Новгород, ул. Минина, 24
donsowa.marina2011@yandex.ru

УДК 539.374+376

Б.В. Горев, В.А. Панамарев

МЕТОД ИНТЕГРАЛЬНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ДЛЯ РАСЧЕТА ИЗГИБА ЭЛЕМЕНТОВ КОНСТРУКЦИЙ

B.V. Gorev¹, V.A. Panamarev²

¹ Lavrentyev Institute of Hydrodynamics SB RAS,
15 Acad. Lavrentyev Ave., Novosibirsk, 630090, Russia.

² Siberian State Industrial University,
42 Kirova St., Novokuznetsk, 654007, Russia.

THE INTEGRATED CHARACTERISTICS METHOD FOR CALCULATION OF A BEND OF DESIGN

Обосновывается возможность использования интегральных характеристик на изгиб [1] для расчета процесса формоизменения и релаксации деталей постоянной и переменной толщины, оребренных панелей из листа и плит с поверхностями, близкими к разворачивающимся, из анизотропных разносопротивляющихся растяжению и сжатию сплавов при плоском напряженном состоянии в условиях ползучести. Приводится методика определения параметров функциональных зависимостей из обработки экспериментальных диаграмм на чистый изгиб прямоугольных балок и кручение квадратных пластин для расчета процесса изгиба пластин с использованием соотношений, связывающих скорости изменения кривизны с моментами для ортотропных материалов в предположении равенства свойств ползучести на растяжение и сжатие [2].

МЕТОД ИНТЕГРАЛЬНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК, ФОРМООБРАЗОВАНИЕ, РЕЖИМ ПОЛЗУЧЕСТИ, ИЗГИБ, ОДИНАРНАЯ И ДВОЙНАЯ КРИВИЗНА. ПЛОСКОЕ НАПРЯЖЕННОЕ СОСТОЯНИЕ.

Possibility of use of integrated characteristics on a bend [1] for calculation of forming process and relaxations of details with a constant thickness from sheet and plates having surfaces close to developable from anisotropic alloys with different resistance to a stretching and compression at a flat stress state in the creep conditions is proved. The technique of definition of functional dependences parameters from processing of experimental diagrams on a pure bend of rectangular beams and torsion of square plates for calculation process of plates bending with use of the relationship between rates of change curvature and the moments for orthotropic materials in the assumption of identical properties on a stretching and compression is spent [2].

INTEGRATED CHARACTERISTICS METHOD, FORMING, CREEP, BENDING, SINGLE AND DOUBLE CURVATURES, FLAT STRESS STATE.

Принятая в авиа- и судостроении, а также в машиностроении ориентация на проектирование изделий с меньшим количеством комплектующих деталей приводит

к более широкому использованию крупногабаритных, цельнофрезерованных из плит, монолитных гладких и оребренных панелей, деталей из листа, фасонных профилей



(стрингеров, шпангоутов) из высокопрочных алюминиевых и титановых сплавов.

Процессы формообразования деталей со сложными аэро- и гидродинамическими поверхностями, размеры которых достигают десяти и более метров, исследованы недостаточно. По-видимому, это обусловлено тем, что расчет таких процессов в трехмерной постановке представляет собой сложную задачу даже при использовании современной компьютерной техники [3 – 5]. Кроме того, деформационно-прочностные характеристики материала, необходимые для проведения расчета на ползучесть, зачастую приходится определять непосредственно из элементов конструкций изделия. При этом свойства ползучести, определенные из экспериментов, которые проводятся на образцах, изготовленных из листов, плит, толстостенных прессованных заготовок в состоянии поставки, существенно отличаются от свойств тех же материалов, но полученных из тонкостенных заготовок, цельнотянутых профилей, оребренных панелей и т. п. Более того, деформационно-прочностные свойства ползучести современных конструкционных алюминиевых и титановых сплавов существенно зависят от толщины листов и плит, направления вырезки заготовок для изготовления образцов и знака прикладываемой нагрузки при проведении испытаний [6, 7].

Необходимость учета реальных свойств ползучести для оценки процесса формообразования показана на примерах чистого изгиба тонких анизотропных пластин одинарной и двойной кривизны в предположении одинаковости свойств на растяжение и сжатие. Результаты расчета «по установившейся стадии» процессов деформирования для анизотропных материалов, по сравнению с таковыми в изотропной постановке без учета анизотропии, могут отличаться на порядок и более [7]. Неучет разносопротивляемости сплавов при ползучести еще больше увеличивает ошибку, приводит к большим погрешностям при оценке израсходованного эксплуатационного ресурса на стадии изготовления и при расчетах на длительную прочность и живучесть [8, 9].

Следует отметить, что изготовить образцы на сжатие из тонкостенных элементов деталей, из листов и тонких плит, в соответствии с ГОСТом не всегда возможно, и вопрос определения характеристик на сжатие остается открытым.

Из сказанного выше применительно к деталям больших габаритов следует необходимость разработки как приближенных (инженерных) методов расчета, так и методик получения характеристик материала с учетом конструктивных особенностей изготавливаемых деталей. Учитывая тот факт, что большая номенклатура крупногабаритных деталей в авиа- и судостроении формообразуется в условиях, близких к чистому изгибу, для проведения соответствующих вычислений в данной статье экспериментально обосновывается упрощенная методика определения интегральных характеристик на изгиб для расчета процесса формообразования элементов конструкций одинарной и двойной (в том числе знакопеременной) кривизны в режиме ползучести.

Возможность использования изгибных характеристик при плоском напряженно-деформированном состоянии для формообразования трансверсально-изотропных пластин из разносопротивляющихся растяжению и сжатию материалов при ползучести в развертывающие (близкие к чистому изгибу) поверхности проиллюстрирована сведением к расчету по общепринятым соотношениям [1, 2], связывающим скорости изменения кривизн с изгибающими и крутящими моментами для ортотропных алюминиевого В95пчТ2 (плита толщиной 8,7 мм) и титанового ВТ-20 (толщина плиты 25 мм) сплавов. Изгибные характеристики при температуре в продольном и поперечном направлениях определялись из чистого изгиба балок прямоугольного сечения под действием постоянных изгибающих моментов напряжениями, не превосходящими предела упругости материала. Характеристику относительного кручения срединной поверхности получали из экспериментальных данных на скручивание квадратной пластины постоянным крутящим моментом по четырехточечной схеме при-

ложения нагрузки в углах пластины [10].

Апробация полученных изгибных характеристик проведена путем сравнения экспериментальных данных с расчетными по релаксации интенсивностей моментов при скручивании квадратных пластин. Получено вполне удовлетворительное совпадение расчетных и экспериментальных данных.

Метод интегральных характеристик на изгиб

Для одинаково работающих на растяжение и сжатие материалов в условиях ползучести, подчиняющихся степенному закону деформирования, геометрия для различных размеров и форм сечения образцов при изгибе отделяется делением изгибающего момента M на обобщенный момент инерции сечения при ползучести [11, с. 804]:

$$J_0 = \int_F |z|^{(n+1)/n} dF, \quad (1)$$

где n — показатель ползучести; z — координата по высоте сечения профиля, F — площадь сечения образца.

Для материалов с упрочнением обобщенный момент инерции сечения при ползучести следует выяснять по формуле

$$J_0 = \int_F |z|^{(\alpha+n+1)/n} dF, \quad (2)$$

где α — показатель упрочнения материала.

При этом зависимость скорости изменения кривизны $\dot{\kappa}$ является универсальной для различных форм сечений:

$$\dot{\kappa} = B(M / J_0)^n. \quad (3)$$

В настоящей работе использованы соотношения (1), (2) для неупрочняющихся и упрочняющихся материалов соответственно. Почти полное совпадение экспериментальных значений кривизны (рис. 1) при изгибе балок одинакового сечения с асимметрией относительно нейтральной оси (тавры, изготовленные из разносопротивляющихся растяжению и сжатию сплавов на основе алюминия и титана [12, 13] равными, но противоположно направленными моментами, позволило в первом приближении отделять геометрию таким же образом, как и для одинаково работающих на растяжение и сжатие материалов.

На рис. 1, а показаны диаграммы изменения кривизны во времени $\kappa = \kappa(t)$ при изгибе тавровой балки, когда полка работает на растяжение и на сжатие. Для сплава АМГ-3 (пруток диаметром 28 мм) при температуре испытаний 200 °С и изгибающем моменте $M = 88,3$ Н·м. Различие свойств ползучести на растяжение и сжатие по скоростям деформаций достигает одного по-

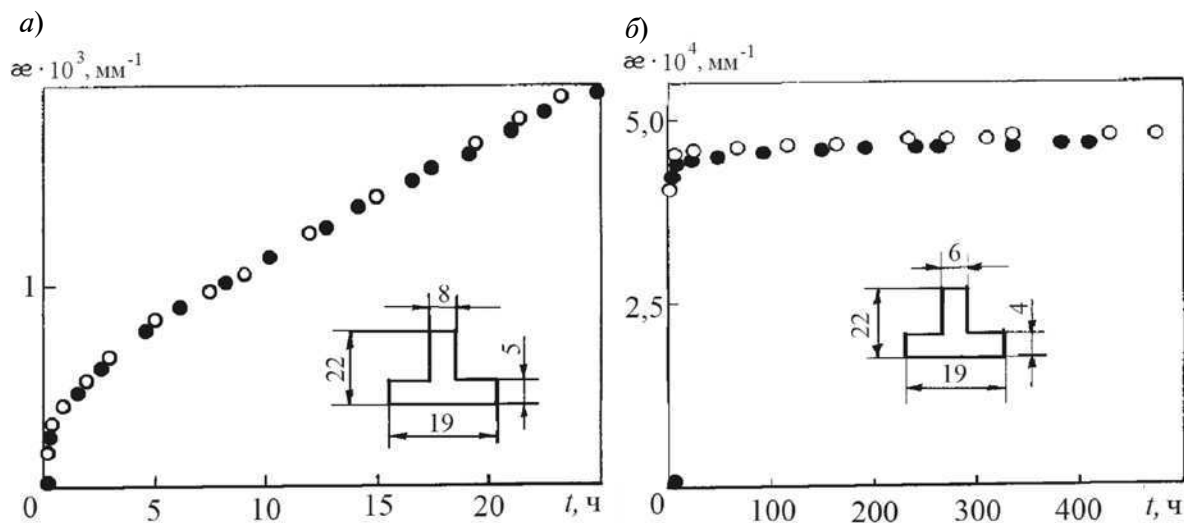


Рис. 1. Экспериментальные диаграммы изменения значений кривизны при изгибе тавровых балок, изготовленных из сплавов АМГ-3 (а) и 17 (б), под действием постоянных значений момента M .

Получены при $T = 200$ °С, $M = 88,3$ Н·м (а) и $T = 20$ °С, $M = 441$ Н·м (б), для случаев, когда полка работает на растяжение (светлые точки) и на сжатие (темные точки).

Показаны геометрические размеры сечения образцов



рядка при одинаковых напряжениях [13].

На рис. 1, б приведены аналогичные экспериментальные данные по изгибу тавровых балок из титанового сплава 17 (Ti-6Al-4V), сильно разнсопротивляющегося в условиях ползучести. Испытывались образцы из плиты толщиной 60 мм, температура испытаний – 20 °С, $M = 441$ Н·м. Свойства ползучести на растяжение и сжатие различаются на несколько порядков по скоростям деформаций [12].

Совпадение экспериментальных и расчетных данных для крайних случаев изгиба балок резко несимметрического сечения (изгиб в одну и в противоположную стороны тавров равного поперечного сечения) свидетельствует о возможности определения интегральных свойств из изгиба балок независимо от формы сечения образца. Более того, это утверждение подкрепляется аналогичным сопоставлением экспериментальных данных при знакопеременном изгибе балок таврового сечения на указанных выше сплавах.

Отсутствие влияния геометрии сечения образца на интегральные характеристики при изгибе проверялось также серией экспериментов на сплаве АМГ-3 под действием постоянного момента для балок с различной формой сечений (квадрат, прямоугольник, круг, полукруг). Однако следует подчеркнуть, что, отделяя геометрию таким же образом, как и для одинаково работающих на растяжение и сжатие материалов, мы сознательно идем на погрешность, которая обусловлена тем, что мы пренебрегаем смещением нейтральной оси балки из-за разнсопротивляемости материала. Погрешность для исследованного сплава не превышала 25 %. Определение изгибных характеристик на балках произвольных форм и размеров (в разумных пределах) дает технически приемлемую точность [1].

Таким образом, для материалов с разными свойствами ползучести на растяжение и сжатие, как и для материалов, одинаково работающих на указанный вид деформации, можно определять изгибные характеристики на каком-либо из профилей и применять их к расчету на ползучесть балок других сечений.

Определение сдвиговой характеристики

Возможность использования изгибных характеристик для расчета на ползучесть чистого изгиба в развертывающие поверхности (в том числе двойкой кривизны) деталей из листа, пластин и плит проиллюстрируем на примере титанового сплава ВТ-20 (плита толщиной 25 мм) при температуре 750 °С и алюминиевого сплава В95пчТ2 (плита толщиной 8,7 мм) при температуре 180 °С. Для сведения расчета на ползучесть изгиба деталей при плоском напряженно-деформированном состоянии из разнсопротивляющегося при ползучести материала к расчету по общепринятым соотношениям, связывающим скорости изменения кривизн с моментами для изотропных материалов [14, с. 526], и по аналогии с ортотропными материалами, справедлива формула [2]:

$$\dot{\epsilon}_{ij} = \frac{\partial \Phi(M_0)}{\partial M_{ij}},$$

$$\Phi = \frac{1}{n+1} \left[\frac{2nh^{(2n+1)/n}}{2n+1} \right]^{-n} M_0^{(n+1)/2}; \quad (4)$$

$$M_0^2 = (A_{22} + A_{33})M_{11}^2 + (A_{11} + A_{33})M_{22}^2 - 2A_{33}M_{11}M_{22} + 2A_{12}M_{12}^2, \quad (5)$$

где $\dot{\epsilon}_i$ – компоненты тензора скоростей изменения кривизн; M_{ij} – компоненты тензора моментов; h – толщина пластины; A_{ij} – компоненты анизотропии.

Кроме изгибных характеристик в продольном и поперечном направлениях, необходимо определить характеристики на сдвиг. Сдвиговую деформацию (относительное кручение срединной поверхности) можно получить из экспериментальных данных по скручиванию квадратной пластины постоянным крутящим моментом M_{12} по четырехточечной схеме приложения нагрузки путем замены горизонтальных касательных напряжений, непрерывно распределенных по краям, вертикальными сосредоточенными силами в углах пластины [10, с. 58].

Для определения характеристики относительного кручения срединной поверхности заготовки была сконструирована и изготовлена лабораторная установка для

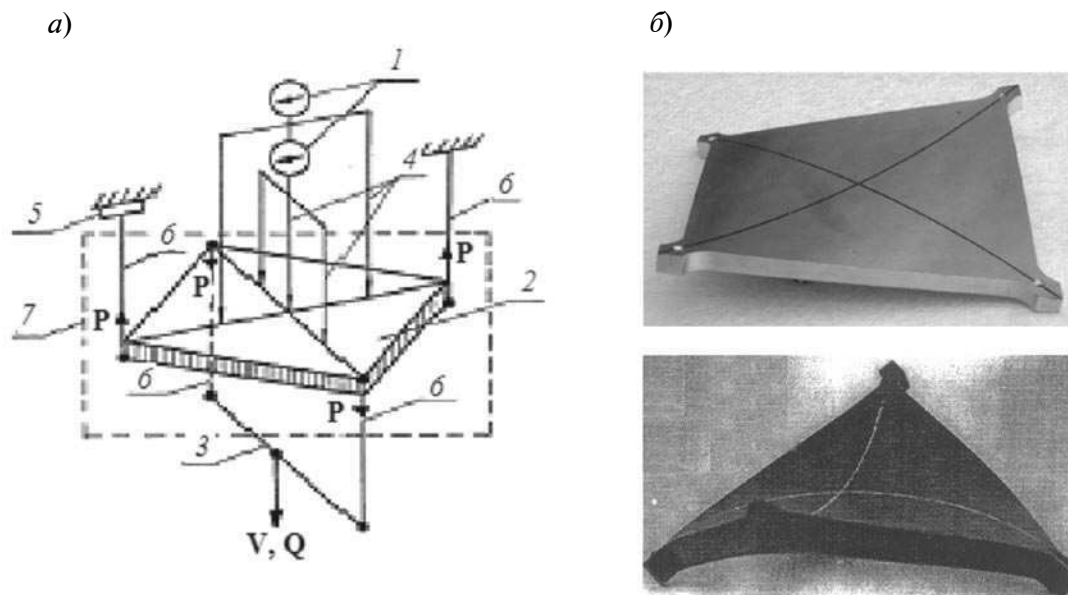


Рис. 2. Кинематическая схема установки для кручения квадратных пластин (а) и фотографии образцов скрученных пластин (верхняя – В95очТ1, нижняя – сплав 17) (б).

Позиции на рис. 2, а: 1 – индикаторы; 2 – образец в виде квадратной пластины; 3 – траверса; 4 – кварцевые стержни замера; 5 – датчик силоизмерительный тензорезисторный (ДСТ) для измерения нагрузки; 6 – захваты; 7 – печное пространство; P – сила, прикладываемая по углам пластины, Q – груз, V – скорость перемещения траверсы 3

скручивания квадратной пластины постоянным крутящим моментом M_{12} по четырехточечной схеме приложения нагрузки.

На рис. 2, а приведена кинематическая схема установки для осуществления чистого кручения квадратной пластины, а также даны схемы нагружения. Установка позволяет, кроме реализации процесса ползучести постоянным крутящим моментом, снимать диаграммы с заданными скоростями изменения кривизны (прогиба δ) и осуществлять релаксацию крутящего момента. Измерение прогиба осуществляется по диагоналям индикаторами 1, кривизна насчитывается в соответствии с гипотезой прямых нормалей для чистого изгиба пластин по формуле $\kappa = 8\delta / l_0^2$; где l_0 – база замера. Пластина 2 (см. также рис. 2, б) изгибается в развешивающуюся седлообразную поверхность (одна диагональ деформируется выпуклостью вверх, другая – выпуклостью вниз). Сила P прикладывается по углам пластины и составляет величину $P = 2M_{12}$. На траверсу 3 можно подвешивать груз Q для реализации постоянного крутящего момента, либо с той же целью ее можно перемещать по

вертикали с заданной скоростью V .

На рис. 3, а приведены экспериментальные диаграммы изменения кривизны во времени при чистом изгибе балок (ширина – 10 мм, высота – 20 мм, длина – 200 мм), вырезанных в поперечном направлении, под действием различных постоянных единичных изгибающих моментов M_{22} , при температуре 750 °С, для титанового сплава ВТ-20.

На рис. 3, б приведены аналогичные экспериментальные данные на чистое кручение квадратных пластин размером 200×200 мм и толщиной 25 мм с различными постоянными единичными интенсивностями моментов M_i . Кривизна, так же как и для балок, рассчитывалась по формуле $\kappa = 8\delta / l_0^2$; величина прогибов δ определялась по двум диагоналям на базе замера $l_0 = 100$ мм и затем усреднялась. После обработки экспериментальных данных на чистый изгиб балок в координатах $\ln \kappa - \ln (M/J_0)$ получены следующие значения коэффициентов для степенного закона ползучести:

$$B_0 = 8,89 \cdot 10^{-10} (\text{МПа})^{-n} / \text{с}; n = 2,5 \quad (6)$$

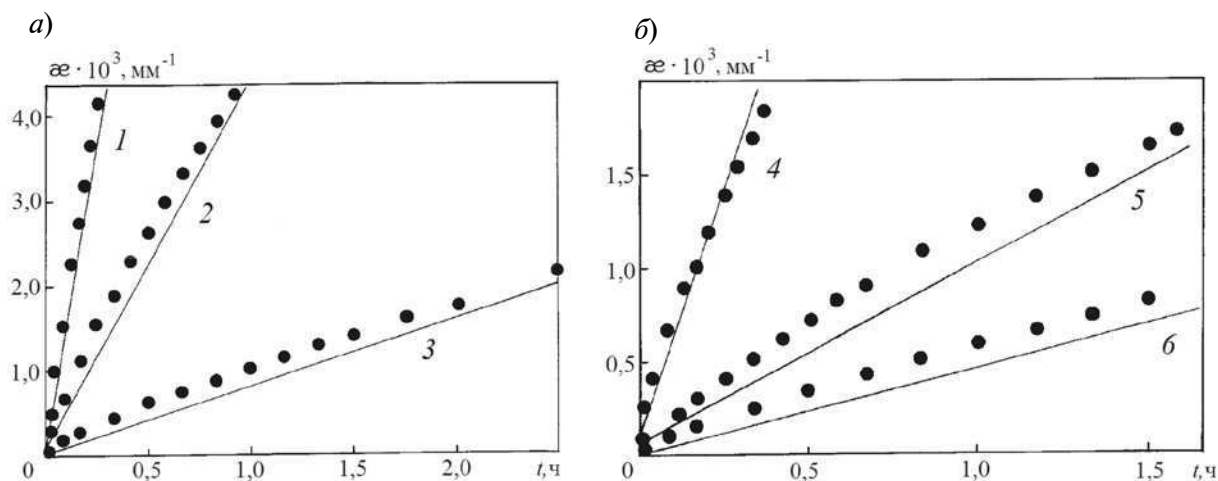


Рис. 3. Экспериментальные (точки) и расчетные (линии) диаграммы изменения во времени кривизны при чистом изгибе прямоугольных балок (а) и чистом кручении квадратных пластин (б) под действием различных постоянных единичных интенсивностей моментов, Н·м/м: $M_{22} = 6,11$ (1), 4,10 (2), 2,07 (3); $M_i = 5,93$ (4), 2,94 (5), 2,22 (6); $T = 750$ °С. Образцы сплава ВТ-20 имели размеры $200 \times 10 \times 20$ мм (а) и $200 \times 200 \times 25$ мм (б)

(модуль упругости равен 31,5 ГПа).

При испытаниях балок на изгиб установлено, что в продольном, поперечном и под углом 45° к направлению проката, при одном и том же значении действующего момента, скорости изменения кривизны практически совпадают, т. е. в плоскости плиты материал изотропный. О том же свидетельствуют и экспериментальные данные, полученные при испытаниях на чистое кручение пластин. При использовании степенной зависимости интенсивности скоростей изменения величин кривизны от интенсивности моментов M_i [13], которая выражается как

$$\dot{\kappa}_i = \frac{B_0}{n+1} \left[\frac{2nh^{(2n+1)/n}}{2n+1} \right]^{-n} M_i^{(n+1)/2}, \quad (7)$$

коэффициент ползучести на кручение и показатель ползучести практически совпали с таковыми на изгиб (см. характеристики (6)).

На рис. 3, а, б показана аппроксимация степенной зависимостью экспериментальных данных на изгиб и кручение, соответственно с использованием характеристик (6).

Апробация полученных характеристик проведена путем сравнения экспериментальных данных с расчетными по релаксации интенсивности моментов при кручении. На рис. 4 представлены экспериментальные

данные по релаксации и результаты расчета для двух пластин толщиной $h = 25$ и 17 мм. Там же показана кинематическая схема кручения пластин силами, сосредоточенными в вершинах углов, для определения характеристик на сдвиг.

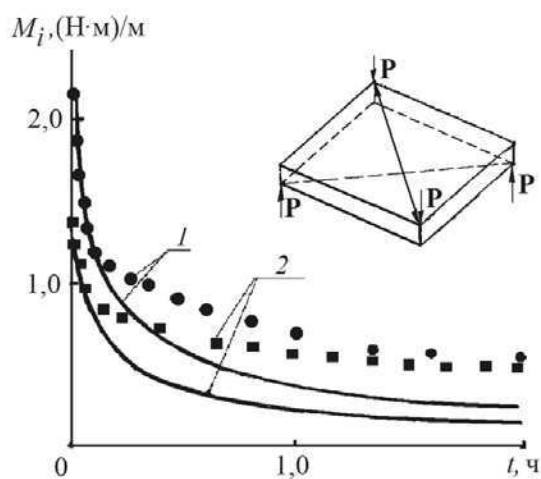


Рис. 4. Сравнение экспериментальных данных (точки) с расчетными (линии) по релаксации интенсивности моментов при кручении двух квадратных пластин разной толщины h , мм: 25 (1) и 17 (2).

Сплав ВТ-20, толщина плиты 25 мм, $T = 750$ °С. Представлена также кинематическая схема кручения силами P

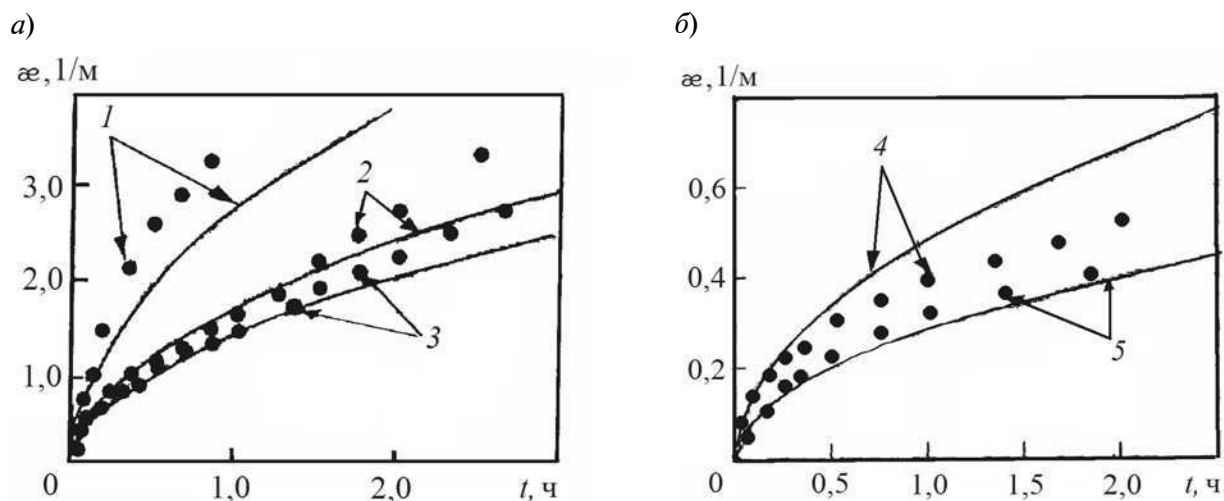


Рис. 5. Экспериментальные (точки) и расчетные (линии) диаграммы изменения во времени кривизны при чистом изгибе прямоугольных балок (а) и чистом кручении квадратных пластин (б) под действием различных постоянных единичных интенсивностей моментов, Н·м/м:
 $M = 4458$ (1), 3980 (2), 3821 (3); $M_i = 2972$ (4), 2620 (5). $T = 180$ °С.
 Образцы сплава В95пчТ2 имели размеры $200 \times 20 \times 8,0$ мм (а) и $180 \times 180 \times 8,2$ мм (б)

Определение характеристик на сдвиг по предложенной методике для монолитных панелей, усиленных с одной стороны системой ребер, не представляется возможным. Вместе с тем использование изгибных характеристик при расчете на ползучесть подкрепленных панелей одинарной кривизны (случай отсутствия кручения) позволяет существенно упростить процедуру, проводимую по ранее предложенной инженерной методике [15, 16]. Знание интегральных характеристик на изгиб позволяет снизить размерность задачи (так как не требуется искать перераспределение напряжений от времени по толщине пластины при изгибе) и проводить расчеты крупногабаритных деталей без использования метода конечных элементов.

На рис. 5, а представлены аналогичные результаты экспериментов на ползучесть при чистом изгибе балок, изготовленных вдоль проката из алюминиевого сплава В95пчТ2 (плита толщиной 8,7 мм), под действием различных постоянных единичных внешних моментов при температуре 180 °С. Аппроксимации были проведены степенной зависимостью скорости изменения кривизны от изгибающего единичного момента по теории упрочнения

$$\dot{\kappa}_{ij} = BM^n / \kappa^\alpha;$$

$$B = 5,5 \cdot 10^{-39} (\text{Н} \cdot \text{м} / \text{м})^{-n} \text{м}^{-\alpha} \text{с}^{-1};$$

$$n = 8,57; \alpha = 1.$$

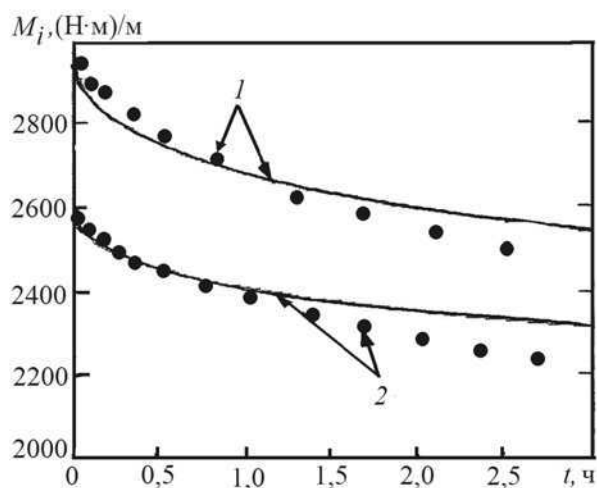


Рис. 6. Сравнение экспериментальных данных (точки) с расчетными (линии) по релаксации интенсивности моментов при кручении квадратных пластин ($h = 8,2$ мм) с различными постоянными единичными интенсивностями моментов в начальный момент времени $M_i(0)$, Н·м/м: 2972 (1) и 2620 (2).
 Сплав В95пчТ2, $T = 180$ °С



На рис. 5, 6 представлены аналогичные результаты по скручиванию двух квадратных пластин размером 180×180 мм и толщиной 8,2 мм. Достаточно удовлетворительное совпадение результатов эксперимента с расчетными данными при использовании одних и тех же характеристик для изгиба балок и кручения пластин говорит о трансверсальной анизотропии плиты (изотропия в плоскости листа).

Апробация полученных характеристик была проведена путем сравнения экспериментальных данных с расчетными (рис. 6) по релаксации интенсивности моментов при кручении пластин из сплава В95пчТ2 при $T = 180^\circ\text{C}$ (толщина пластин $h = 8,2$ мм).

Таким образом, для тонколистовых сплавов, когда невозможно определение

свойств ползучести на сжатие в соответствии с ГОСТом, интегральные характеристики (включая характеристику относительного кручения срединной поверхности) позволяют рассчитывать при задании процесса нагружения и в кинематической постановке упреждающую геометрию оснастки с учетом упругого восстановления (распружинивания) и являются паспортными для расчета процесса формообразования. На основании кривых релаксации определяется рациональное время выдержки заготовки в заневоленном состоянии, при котором необратимые деформации ползучести достигнут максимальной величины, тем самым распружинивание заготовки будет минимальным.

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ (проект № 11-08-00845-а).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Горев, Б.В. К обоснованию метода изгибных характеристик для расчета на ползучесть изгиба элементов конструкций [Текст] / Б.В. Горев // Сб. научн. тр. «Динамика сплошной среды». — Новосибирск: Изд. Ин-та гидродинамики им. Лаврентьева СО РАН, 2001. — Вып. 119. — С. 36–42.
2. Соснин, О.В. О некоторых особенностях ползучести листовых материалов [Текст] / О.В. Соснин, Б.В. Горев // Сб. науч. тр. «Динамика сплошной среды». — Новосибирск: Изд. Ин-та гидродинамики им. Лаврентьева СО РАН, 1970. — Вып. 4. — С. 5–10.
3. Коробейников, С.Н. Математическое моделирование процессов ползучести металлических изделий из материалов, имеющих разные свойства при растяжении и сжатии [Текст] / С.Н. Коробейников, А.И. Олейников, Б.В. Горев, К.С. Бормотин // Вычислительные методы и программирование. — 2008. — Т. 9. — С. 346–365.
4. Горев, Б.В. К расчету процесса деформирования листовых деталей двойной кривизны из сплавов с разными свойствами на растяжение и сжатие в условиях ползучести [Текст] / Б.В. Горев, И.А. Банщикова, А.И. Олейников, А.И. Пекарш // Матер. XII Междунар. симп. «Динамические и технологические проблемы механики конструкций и сплошных сред». — М.: Изд-во МАИ, 2006. — С. 41–43.
5. Банщикова, И.А. О ползучести пластин из алюминиевых сплавов при изгибе [Текст] / И.А. Банщикова, Б.В. Горев, И.Ю. Цвелодуб // Прикладная механика и техническая физика. — 2007. — Т. 48. — № 5. — С. 156–159.
6. Горев, Б.В. Особенности деформирования листов и плит из алюминиевых сплавов в режиме ползучести [Текст] / Б.В. Горев, И.Ж. Масанов // Технология машиностроения. — 2009. — № 7. — С. 13–20.
7. Горев, Б.В. Технологические процессы обработки металлов давлением в режимах ползучести и их моделирование [Текст] / Б.В. Горев, О.В. Соснин // Тр. Междунар. научн.-техн. конф. СМТТ. — СПб, 2009. — С. 257–269.
8. Горев, Б.В. К описанию ниспадающего участка кривой деформирования «напряжение — деформация» по кинетическим уравнениям со скалярным параметром поврежденности / Б.В. Горев, И.А. Банщикова // Вестник Самарского гос. техн. ун-та. Сер. Физико-математические науки. — 2008. — № 2 (17). — С. 110–117.
9. Горев, Б.В. К использованию определяющих уравнений в энергетической форме для оценки живучести и разрушения элементов конструкций [Текст] / Б.В. Горев, И.А. Банщикова // Тр. VII Всерос. научн. конф. с междунар. участием. — Ч. 1. Математические модели механики, прочности и надежности элементов конструкций. — Самара: СамГТУ, 2010. — С. 109–112.
10. Тимошенко, С.П. Пластинки и оболочки [Текст] / С.П. Тимошенко, С. Войновский-Кригер. — М.: Физматгиз, 1963. — 636 с.
11. Основы современных методов расчета на прочность в машиностроении. Расчет при динамической нагрузке. Устойчивость. Ползучесть

[Текст] / Под ред. С.Д. Панамарева. — М.: Машгиз, 1952. — 862 с.

12. **Никитенко, А.Ф.** О прочностных особенностях титановых сплавов [Текст] / А.Ф. Никитенко, О.В. Соснин, Н.Г. Торшенев, И.К. Шокало // Прикладная механика и техническая физика. — 1976. — № 6. — С. 118–122.

13. **Соснин, О.В.** О ползучести материалов с разными характеристиками на растяжение и сжатие [Текст] / О.В. Соснин // Прикладная механика и техническая физика. — 1970. — № 5. — С. 136–139.

14. **Работнов, Ю.Н.** Механика деформи-

руемого твердого тела [Текст] / Ю.Н. Работнов. — М.: Наука, 1988. — 752 с.

15. **Горев, Б.В.** К вопросу обработки материалов давлением в режиме ползучести [Текст] / Б.В. Горев, И.Д. Клопотов, Г.А. Раевская, О.В. Соснин // Прикладная механика и техническая физика. — 1980. — № 5. — С. 185–191.

16. **Сотников, В.С.** Формообразование ватфельных панелей из сплава АК4-1 в режимах ползучести [Текст] / В.С. Сотников, Б.В. Горев, О.В. Соснин [и др.] // Руководящий технический материал (РТМ-1.4.988-81). — М.: НИАТ, 1983. — 44 с.

REFERENCES

1. **Gorev B.V.** K obosnovaniju metoda izgibnykh karakteristik dlja rascheta na polzuchest' izgiba jelementov konstrukcij. Sb. nauchn. tr. «Dinamika sploshnoj sredy», Novosibirsk: Izd. In-ta gidrodinamiki im. Lavrent'eva SO RAN, 2001, Vol. 119, pp. 36–42. (rus)

2. **Sosnin O.V., Gorev B.V.** O nekotorykh osobennostjah polzuchesti listovykh materialov. Sb. nauch. tr. «Dinamika sploshnoj sredy», Novosibirsk: Izd. In-ta gidrodinamiki im. Lavrent'eva SO RAN, 1970, Vol. 4, pp. 5–10. (rus)

3. **Korobeynikov S.N., Oleynikov A.I., Gorev B.V., Bormotin K.S.** Matematicheskoe modelirovanie processov polzuchesti metallicheskih izdelij iz materialov, imejushchih raznye svoystva pri rastjazhenii i szhatii. *Vychislitel'nye metody i programirovanie*, 2008, Vol. 9, pp. 346–365. (rus)

4. **Gorev B.V., Banshnikova I.A., Olejnikov A.I., Pekarsh A.I.** K raschetu processa deformirovaniya listovykh detalej dvojnoj krivizny iz splavov s raznymi svoystvami na rastjazhenie i szhatie v usloviyah polzuchesti. Mater. XII Mezhdunar. simp. «Dinamicheskie i tehnologicheskie problemy mehaniki konstrukcij i sploshnykh sred». Moscow, Izd-vo MAI, 2006, pp. 41–43. (rus)

5. **Banshnikova I.A., Gorev B.V., Tselodub I.Yu.** O polzuchesti plastin iz aluminievых сплавов pri izgibe, *Prikladnaja mehanika i tehničeskaja fizika*, 2007, Vol. 48, № 5, pp. 156–159. (rus)

6. **Gorev B.V., Masanov I.Zh.** Osobennosti deformirovaniya listov i plit iz aluminievых сплавов v rezhime polzuchesti, *Tehnologija mashinostroenija*, 2009, № 7, pp. 13–20. (rus)

7. **Gorev B.V., Sosnin O.V.** Tehnologicheskie processy obrabotki metallov davleniem v rezhimah polzuchesti i ih modelirovanie. Tr. Mezhdunar. nauchn.-tehn. konf. SMTT, SPb, 2009, pp. 257–269. (rus)

8. **Gorev B.V., Banshnikova I.A.** K opisaniju nispadajushhego uchastka krivoj deformirovaniya

«naprjazhenie — deformacija» po kineticheskim uravnenijam so skaljarnym parametrom povrezhdennosti. *Vestnik Samarskogo gos. tehn. un-ta. Ser. Fiziko-matematicheskie nauki*, 2008, № 2 (17), pp. 110–117. (rus)

9. **Gorev B.V., Banshnikova I.A.** K ispol'zovaniju opredelajushchih uravnenij v jenergetičeskoj forme dlja ocenki zhivuchesti i razrushenija jelementov konstrukcij. Tr. VII Vserossijskoj nauchn. konf. s mezhdunar. uchastiem, Ch. 1. Matematicheskie modeli mehaniki, prochnosti i nadezhnosti jelementov konstrukcij, Samara: SamGTU, 2010, pp. 109–112. (rus)

10. **Timoshenko S.P., Voynovskij-Kruger S.** Plastinki i obolochki. Moscow, Fizmatgiz, 1963, 636 p. (rus)

11. Osnovy sovremennykh metodov rascheta na prochnost' v mashinostroenii. Raschet pri dinamicheskoj nagruzke. Ustojčivost'. Polzuchest'. Edited by S.D. Panamarev. Moscow, Mashgiz, 1952, 862 p. (rus)

12. **Nikitenko A.F., Sosnin O.V., Torshenov N.G., Shokalo I.K.** O prochnostnykh osobennostjah titanovykh сплавов. *Prikladnaja mehanika i tehničeskaja fizika*, 1976, № 6, pp. 118–122. (rus)

13. **Sosnin O.V.** O polzuchesti materialov s raznymi karakteristikami na rastjazhenie i szhatie. *Prikladnaja mehanika i tehničeskaja fizika*, 1970, № 5, pp. 136–139. (rus)

14. **Rabotnov Yu.N.** Mehanika deformiruemogo tverdogo tela. Moscow, Nauka, 1988, 752 p. (rus)

15. **Gorev B.V., Klopotov I.D., Raevskaya G.A., Sosnin O.V.** K voprosu obrabotki materialov davleniem v rezhime polzuchesti. *Prikladnaja mehanika i tehničeskaja fizika*, 1980, № 5, pp. 185–191. (rus)

16. **Sotnikov V.S., Gorev B.V., Sosnin O.V. et al.** Formoobrazovanie vafel'nykh panelej iz splava AK4-1 v rezhimah polzuchesti. Rukovodiashhij tehničeskij material (RTM-1.4.988-81). Moscow, NIAT, 1983, 44 p. (rus)



ГОРЕВ Борис Васильевич — доктор технических наук, ведущий научный сотрудник *Института гидродинамики им. М.А. Лаврентьева СО РАН.*

630090, г. Новосибирск, пр. Ак. Лаврентьева, 15

gorevbv@yandex.ru

ПАНАМАРЕВ Виктор Александрович — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры *высшей математики Сибирского государственного индустриального университета.*

654007, г. Новокузнецк, ул. Кирова, 42

panva@qde.ru

УДК 539.3

А.Ю. Ларичкин, Б.В. Горев

ПОСТРОЕНИЕ СДВИГОВЫХ ДЕФОРМАЦИЙ ПОЛЗУЧЕСТИ ИЗ ЧИСТОГО КРУЧЕНИЯ СПЛОШНЫХ КРУГЛЫХ ВАЛОВ

A.Yu. Larichkin, B.V. Gorev

Lavrentyev Institute of Hydrodynamics SB RAS,
15 Acad. Lavrentyev Ave., Novosibirsk, 630090, Russia

THE CONSTRUCTING SHEAR STRAINS FROM THE PURE TORSION OF ROUND SOLID SAMPLES

На примере титанового сплава ВТ-9 и алюминиевых сплавов Д16Т, АК4-1Т, АМГ-6М показана возможность описания процесса ползучести и их разрушения применительно к задаче кручения круглых валов. При обработке экспериментальных данных использовался степенной закон ползучести. В экспериментах на чистое кручение величина касательных напряжений не превосходила предела упругости материала. Получено вполне удовлетворительное совпадение расчетов с экспериментальными данными.

ПОЛЗУЧЕСТЬ, ДЕФОРМАЦИЯ СДВИГА, ЧИСТОЕ КРУЧЕНИЕ, СПЛОШНОЙ КРУГЛЫЙ ВАЛ, КИНЕТИЧЕСКОЕ УРАВНЕНИЕ.

Trough the example of titanium VT-9 and aluminium alloys (D16T, AK4-1T, AMG-6M) the possibility of describing the creep and fracture on torsion of solid round samples has been demonstrated. The power law of creep was used. The kinetic creep equation in the energy form describes three stages of creep. Satisfactory agreement between the experimental and settlement data was obtained.

CREEP, SHEAR STRAIN, PURE TORSION, ROUND SOLID SHAFT, KINETIC EQUATION.

Сдвиговые характеристики материалов, которые являются доминирующими при расчетах процессов формообразования детали, определяются из экспериментов на кручение тонкостенных цилиндрических образцов, однако при конечных деформациях свыше 8–10 % тонкостенные образцы теряют устойчивость. В связи с этим для больших деформаций следует использовать толстостенные или сплошные образцы [1].

Для получения одноосных кривых ползучести τ – γ из экспериментов по кручению сплошных круглых цилиндров, где касательное напряжение $\tau = \sigma_i / \sqrt{3}$, сдвиговая деформация $\gamma = \sqrt{3}\varepsilon_i$ (σ_i – интенсивность напряжений, ε_i – интенсивность деформаций ползучести), использовался приближенный метод характеристического напряжения. В нагруженном круглом сплошном образце предполагается существование не-

которой характеристической точки (ХТ). В ее малой окрестности реализуется практически неизменное во времени напряженное состояние вплоть до начала разрушения [2]. Величины деформаций и напряжений в этой ХТ определяют поведение всей конструкции в целом, вплоть до разрушения.

Понятие характеристической точки условно, так как непосредственные расчеты на ползучесть с использованием уравнений повреждаемости показывают, что интенсивность напряжений в этой точке остается постоянной в некоторых пределах [2]. Интенсивность напряжения зависит, хотя и слабо, от показателей ползучести, повреждаемости и разупрочнения. Далее в работе все значения интересующих нас величин определяются в ХТ.

В работе [1] приведено сравнение экспериментальных данных по кручению тон-

костенных и толстостенных образцов при одинаковых касательных напряжениях τ в ХТ. Определялись значения сдвиговой деформации в тонкостенном образце и в ХТ толстостенного образца γ при развитых деформациях. Анализ показал практическое совпадение кривых $\tau - \gamma$ для толстостенных и тонкостенных образцов при малых и развитых деформациях.

Координата ХТ для сплошного круглого образца вычисляется по формуле

$$r = R \left(\frac{3n+1}{4n} \right)^{n/(n-1)},$$

а если неизвестен показатель ползучести n , то координату ХТ с достаточной степенью точности можно определять как пересечение эпюр упругого и идеально пластического распределения напряжений $r = 3R/4$ [2].

Значение напряжения в ХТ вычислялось по формулам:

$$\tau = \frac{M}{I_{np}} r^{\frac{1}{n}} = \frac{M}{W_{1p}} \frac{r}{R}$$

(при известном показателе ползучести n) и

$$\tau = \frac{M}{W_p}$$

(если параметр n неизвестен), где

$I_{np} = \int_0^R r^{2+\frac{1}{n}} dr$ — полярный момент сечения;

$W_{1p} = \frac{\pi R^3}{2}$, $W_p = \frac{2}{3} \pi R^3$ — соответственно упругий и пластический моменты сопротивления кручению.

Численный анализ перераспределения напряжений проводился с помощью одноосных зависимостей, в предположении гипотез плоских сечений и прямых радиусов. Величина интенсивности деформаций в ХТ при кручении вычислялась по формуле Од-квиста:

$$\varepsilon_i = \frac{1}{\sqrt{3}} \int_0^t \frac{r \dot{\phi}}{l_0} dt = \gamma / \sqrt{3}. \quad (1)$$

Сведение в «единую кривую» экспериментальных диаграмм ползучести для кручения сплошных круглых образцов, построенных в ХТ, с использованием в качестве параметра поврежденности $\omega = A / A^*$ ($A^* \neq \text{const}$) — нормированной удельной работы рассеяния и нормированного времени

$\bar{\tau} = t / t^*$ [3, 4], выражается равенством

$$(1 - \omega^{(1+\alpha)})^{m+1} = 1 - \bar{\tau} \quad (0 \leq \omega \leq 1) \quad (2)$$

и позволяет при

$$\tau = \text{const}, \quad A^* = A^*(\tau) = \int_0^{t^*} \tau \dot{\gamma} dt \neq \text{const}$$

описать деформирование материалов с тремя стадиями ползучести уравнениями в энергетической форме [5]. Последние имеют вид

$$\frac{dA}{dt} = \frac{B_A \tau^n}{\omega^\alpha (1 - \omega^{\alpha+1})^m}; \quad \frac{d\omega}{dt} = \frac{B_\omega \tau^k}{\omega^\alpha (1 - \omega^{\alpha+1})^m}, \quad (3)$$

где $\dot{\gamma}$ — скорость сдвиговой деформации ползучести в ХТ; τ — нормированное время; t^* — значение времени в момент разрушения образца; A, A^* — удельная работа рассеяния при ползучести в текущий момент и в момент разрушения в ХТ, соответственно; ω — скалярный параметр поврежденности материала; α, m — параметры упрочнения и разупрочнения.

В системе из двух определяющих уравнений ползучести и повреждаемости в каждом используется одна и та же функция от повреждаемости, поэтому система (3) содержит на один параметр меньше, чем уравнения Работнова, и она не обладает произволом [6].

Разупрочняющийся материал. В этом случае $\alpha = 0$, $m \neq 0$; уравнение единой кривой (2) примет следующий вид:

$$(1 - \omega)^{m+1} = 1 - \bar{\tau}.$$

Для определения m используются экспериментальные данные во всем диапазоне изменения параметра поврежденности ω . Если проинтегрировать уравнение повреждаемости при фиксированных значениях τ , и температуры от некоторых текущих значений ω, τ до разрушения $\omega = \tau = 1$, то получим соотношение

$$(1 - \omega)^{m+1} = (m+1) B_\omega \tau^k t^* (1 - \bar{\tau}),$$

которое в двойных логарифмических координатах

$$\ln(1 - \bar{\tau}) - \ln(1 - \omega)$$

представляет собой уравнение прямой. По ее наклону находится коэффициент m , который определяется как среднее значение

ние m_j для нескольких значений τ_j . Коэффициент k находится из наклона прямой $\ln(t_j^*) - \ln(\tau_j)$. Коэффициенты B_ω , B_A и показатель ползучести n определяются общепринятыми методами из экспериментальных данных мощности рассеяния энергии и скорости накопления повреждений в начальный момент времени $W = W_0$, $\omega = \omega_0$ либо на установившемся участке кривой ползучести, если он есть [5]. Также для каждого $\tau_j = \text{const}$ в j -м эксперименте находим:

$$\omega = 1 - [1 - (m+1)B_\omega \tau_j^k]^{1/(m+1)};$$

$$A = \frac{B_A}{B_\omega} \tau_j^{n-k} \omega; \quad \omega = A / A_j^*; \quad A_j^* = \frac{B_A}{B_\omega} \tau_j^{n-k};$$

$$\bar{\tau} = t / t_j^*; \quad t_j^* = \frac{1}{(m+1)B_\omega \tau_j^k}.$$

В случае, когда неизвестны A^* , t^* для каждого $\tau_j = \text{const}$, можно, тем не менее, определить среднее значение времени разрушения $t^*(\tau_j)$ из опытных кривых (с точностью до разброса экспериментальных данных) и, следовательно, рассчитать $\bar{\tau} = t / t_j^*$. Преобразуя первое уравнение (3), получим выражение

$$W = B_A \tau_j^n / (1 - \bar{\tau})^{m/(m+1)},$$

которое в двойных логарифмических координатах

$$\ln(1 - \bar{\tau}) - \ln(W)$$

представляет собой уравнение прямой с тангенсом угла наклона $m/(m+1)$. Таким образом находим m_j для каждого $\tau_j = \text{const}$. Среднее значение m_j даст искомое m .

Приведем параметры функциональных зависимостей кинетических уравнений (3), экспериментальные и расчетные кривые, полученные при кручении круглых сплошных образцов для материалов АК4-Т1, Д16Т при $T = 250^\circ\text{C}$.

На рис. 1 приведены экспериментальные значения интенсивностей деформаций ползучести и работы рассеяния в ХТ для кручения сплошных круглых валов из сплава АК4-1Т при $T = 250^\circ\text{C}$ и их аппроксимация по кинетическим уравнениям ползучести со скалярным параметром поврежденности. Также на рис. 1, в приведена «единая кри-

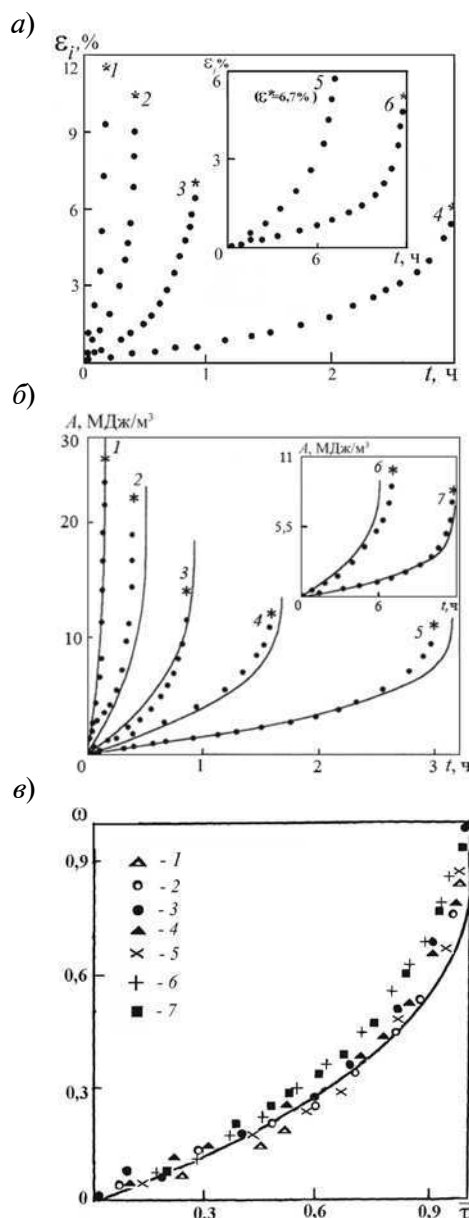


Рис. 1. Этапы построения сдвиговых деформаций из чистого кручения сплошных круглых образцов (сплав АК4-1Т при $T = 250^\circ\text{C}$): точки – экспериментальные значения диаграмм интенсивности деформаций ползучести (а), работы рассеяния (б) в ХТ и их представление в виде единой кривой в нормированных координатах (в) при различных значениях постоянной интенсивности напряжений σ_i (1 – 7); звездочками обозначены моменты разрушения образцов; аппроксимация экспериментальных данных (сплошные линии) кинетическими уравнениями (3) (см. б) со скалярным параметром поврежденности ω (параметры аппроксимации представлены в таблице). Значения σ_i , МПа: 230 (1), 210 (2), 200 (3), 190 (4), 180 (5), 170 (6), 160 (7)

Параметры аппроксимации экспериментальных зависимостей уравнениями «единой кривой» для круглых сплошных образцов

Марка сплава	Размеры образца, мм	$T, ^\circ\text{C}$	Параметр	Значение
АК4-1Т	$R = 10$ $l_0 = 50$	250	$B_A, \text{МПа}^{-n} \cdot \text{с}^{-1}$	$1,83 \cdot 10^{-36}$
			n	16
			m	2
			$B_\omega, \text{МПа}^{-k} \cdot \text{с}^{-1}$	$1,88 \cdot 10^{-28}$
			k	11,5
Д16Т	Трубчатый, $r_{\text{внутр}} = 18$ $R_{\text{внеш}} = 20$ $l_0 = 36$	250	$A^*, \text{МДж/м}^3$	8,8
			$B, \text{МПа}^{-n} \cdot \text{с}^{-1}$	$2,15 \cdot 10^{-14}$
			n	6
			m	10
АМГ-6М	$R = 10$ $l_0 = 42$	450	$B, \text{МПа}^{-n} \cdot \text{с}^{-1}$	$3,48 \cdot 10^{-7}$
			n	4,61
ВТ-9	$R = 5$ $l_0 = 40$	900	$B, \text{МПа}^{-n} \cdot \text{с}^{-1}$	$1,21 \cdot 10^{-6}$
			n	3,46

вая» в нормированных координатах (различные символы – экспериментальные данные, представленные на рис. 1, а, б) и сплошной линией показана их аналитическая аппроксимация (рис. 1, в) [3]. Образцы были вырезаны в направлении проката плиты $h = 64$ мм в состоянии поставки. Все найденные значения параметров аппроксимации представлены в таблице.

На рис. 2 приведены экспериментальные значения работы рассеяния во всем объеме образца и их аппроксимация для ряда постоянных в ХТ касательных напряжений значения. Эксперименты проводились на круглых трубчатых образцах из материала Д16Т при температуре $250\text{ }^\circ\text{C}$. Образцы вырезались из прутка диаметром 40 мм в продольном направлении. Д16Т является анизотропным

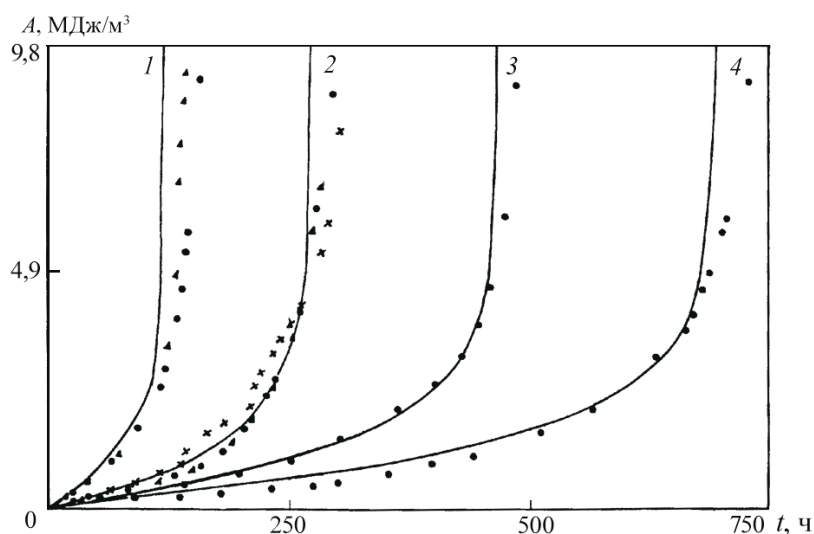


Рис. 2. Значения рассеянной работы во всем объеме образца (символы) в экспериментах по чистому кручению круглых трубок из сплава Д16Т при $T = 250\text{ }^\circ\text{C}$ для различных значений постоянного касательного напряжения в ХТ τ (1 – 4), и аппроксимация экспериментальных данных (сплошные линии). Параметры аппроксимации приведены в таблице. Значения τ , МПа: 45 (1), 40 (2), 36 (3), 34 (4)

материалом с одинаковыми свойствами на растяжения и сжатие. При его кручении процесс ползучести происходит в два раза интенсивнее, по сравнению с ползучестью при растяжении и сжатии для одной и той же величины интенсивности напряжений. Тем не менее, для этого сплава критическое значение удельной работы рассеяния энергии при ползучести остается одинаковым и составляет $A^* = 8,8 \text{ МДж/м}^3$.

Материал с тремя стадиями ползучести. В этом случае $\alpha \neq 0$, $m \neq 0$; уравнение единой кривой примет вид (2). Параметр упрочнения α определяется по данным из начального участка единой кривой (до точки перехода на установившуюся стадию ползучести). Принимаем условие

$$d\omega / dt = B_\omega \tau^n / \omega^\alpha$$

и интегрируем это равенство от нулевого состояния до текущего ω , t , а затем логарифмируем; в итоге получаем уравнение прямой линии:

$$(\alpha + 1) \ln \omega = \ln[(\alpha + 1)B_\omega \tau^n] + \ln t.$$

По наклону полученных зависимостей для нескольких значений τ_j (либо сразу по усредненным значениям единой кривой с использованием метода наименьших квадратов) находится коэффициент α .

Показатель разупрочнения материала m находится по конечному участку экспериментальной единой кривой (после точки перегиба) для материалов с упрочнением. Метод отыскания показателя m аналогичен методу, использованному для разупрочняющегося материала:

$$t^* = \frac{1}{(m + 1)(1 + \alpha)B_\omega \tau^k}.$$

Данные экспериментов материалов с тремя стадиями ползучести и значения констант аппроксимационных зависимостей приведены в работе [4].

Материал с установившейся стадией ползучести. В этом случае $\alpha = 0$, $m = 0$; уравнение единой кривой (2) примет вид $\omega = \tau$, первое уравнение (3) преобразуется в уравнение вида

$$dA/dt = B\tau^n. \quad (4)$$

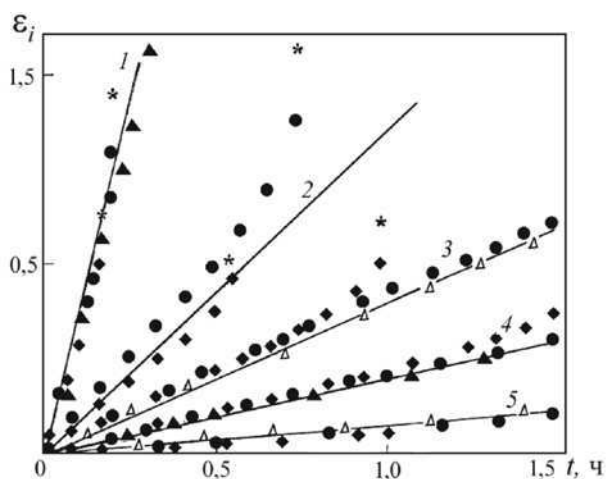


Рис. 3. Экспериментальные диаграммы деформирования при чистом растяжении (кружки и ромбики) и чистое кручение сплошных (темные треугольники) и толстостенных трубчатых (светлые треугольники) образцов из сплава АМГ-6М при $T = 450 \text{ }^\circ\text{C}$.

Диаграммы получены для образцов, вырезанных под углами 0° (кружки, темные и светлые треугольники) и 45° (ромбики) к оси прутка при различных интенсивностях напряжений σ_i , МПа: 19,60 (семейство символов и прямая 1), 14,70 (2), 12,25 (3), 9,82 (4), 7,50 (5). Звездочки – моменты разрушения образцов. Прямые линии – аппроксимация данных степенной зависимостью (4) (параметры см. в таблице)

Приведем характеристики, экспериментальные и расчетные кривые, полученные при деформировании образцов из материалов АМГ-6М при температуре $T = 450 \text{ }^\circ\text{C}$.

На рис. 3 представлены результаты экспериментов на чистое кручение и растяжение для сплава АМГ-6М при температуре $T = 450 \text{ }^\circ\text{C}$ (температура сверхпластического течения) и аппроксимация экспериментальных данных по степенной зависимости (4). Образцы для экспериментов вырезались из прутка, имеющего диаметр 45 мм в состоянии поставки, вдоль его оси и под 45° к ней. Эксперименты на чистое кручение образцов проводились с той же величиной интенсивности напряжений в характеристической точке (ХТ), что и при растяжении. Звездочками показано разрушение – распад образца на две части [3]. Отметим, что для материала АМГ-6М образцы на кручение разрушались при большем значении интенсивности деформаций, чем при растяжении.

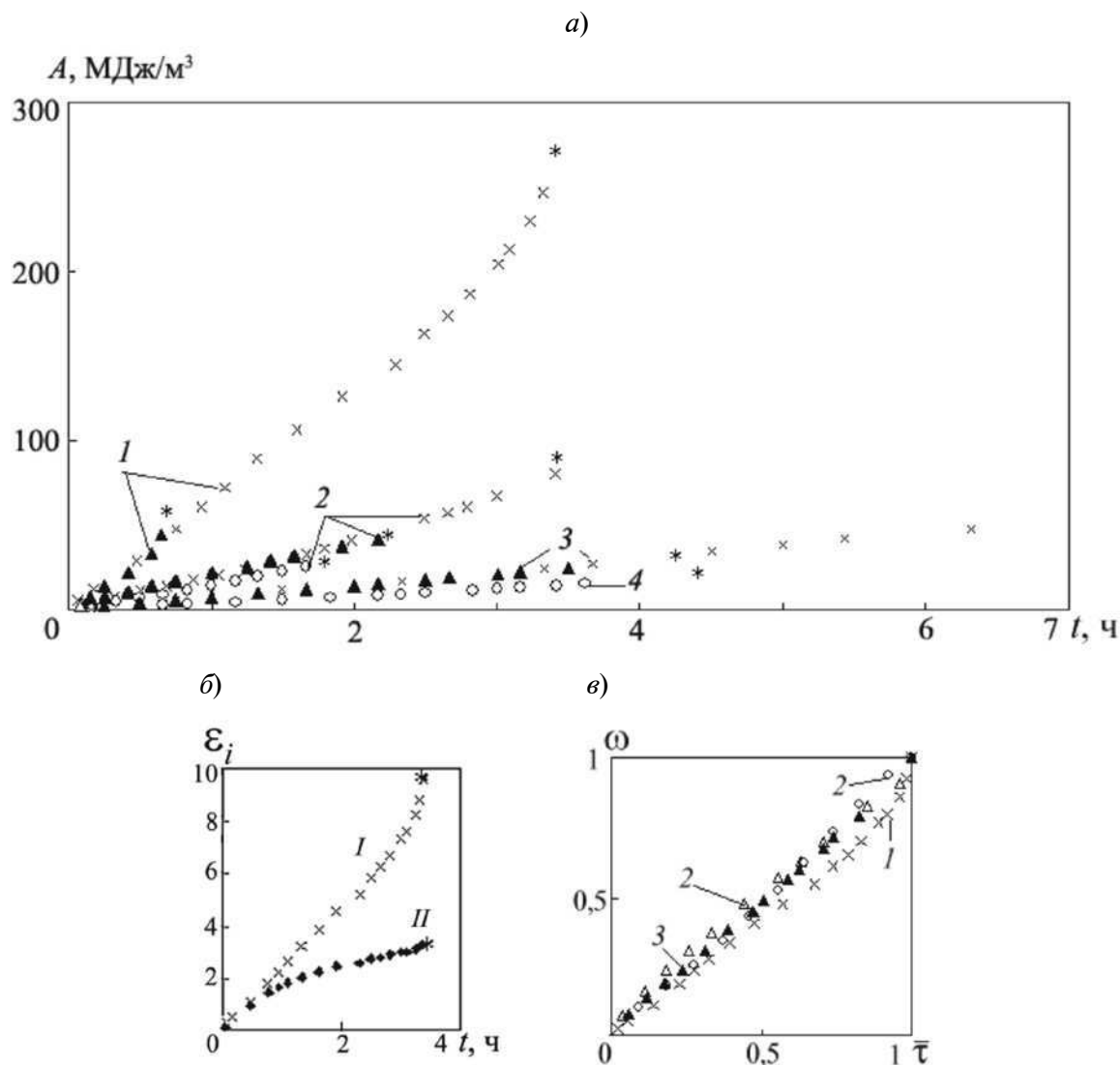


Рис. 4 Результаты испытаний на ползучесть сплава ВТ-9 ($T = 900\text{ }^{\circ}\text{C}$) при больших деформациях: чистое растяжение круглых образцов, вырезанных под углом 0° (кружки) и 45° (треугольники) к оси прутка диаметром 50 мм; чистое кручение (крестики): а – значения работы рассеяния в ХТ; б – интенсивности деформаций, вычисленные по формулам Одквиста (1) (семейство символов *I*) и Надаи (5) (семейство символов *II*) для $\sigma_i = 28\text{ МПа}$; в – представление данных в нормированных координатах.

Эксперименты проведены при различных интенсивностях постоянных напряжений σ_i , МПа: 28 (1), 20 (2), 15 (3), 14 (4) (параметры см. в таблице)

На рис. 4 приведены результаты экспериментов на ползучесть титанового сплава ВТ-9 при $T = 900\text{ }^{\circ}\text{C}$ для чистого растяжения и чистого кручения, с различными значениями постоянных интенсивностей напряжений. Образцы для испытаний на кручение вырезались из прутка диаметром 50 мм вдоль его оси.

Следует отметить, что величины ε_i в момент разрушения образцов при кручении превосходят таковые на растяжение в разы при одной и той же величине $\sigma_i = \text{const}$. Объяснить это можно, по-видимому, существенной разнсопротивляемостью материала растяжению и сжатию в условиях ползучести. Вместе с тем в нормированных

координатах все экспериментальные точки группируются в единую кривую.

Из представленных на рис. 4 кривых следует, что сплав ВТ-9 при температуре сверхпластичности 900 °С подчиняется закону установившегося течения практически вплоть до разрушения без каких-либо проявлений упрочнения-разупрочнения. Удовлетворительное совпадение экспериментальных значений удельной работы рассеяния при растяжении образцов, вырезанных в направлениях под 0° и 45° к оси прутка, и при кручении для одной и той же величины $\sigma_i = \text{const}$ позволяет утверждать, что исследуемый материал изотропен. Отметим, что величина деформации при кручении достигает в момент разрушения очень больших значений (порядка $\varepsilon_i \approx 10$). Так, для одной и той же интенсивности напряжений $\sigma_i = 28$ МПа указанная величина при кручении превышает деформацию при растяжении почти в пять раз.

Использование формулы Надаи [7] для обработки экспериментов на чистое кручение дает отклонение от единой кривой уже при деформациях, превышающих $\varepsilon_i \approx 1$. Действительно, экспериментальные данные для $\sigma_i = 28$ МПа, обработанные по формуле из [7]:

$$\varepsilon_i^{(\ln)} = \frac{\gamma^{(\ln)}}{\sqrt{3}}, \quad (5)$$

$$\gamma^{(\ln)} = \sqrt{\frac{2}{3}} \ln \left[1 + \left(\frac{r\varphi}{2} \right)^2 + r\varphi \left(1 + \frac{(r\varphi)^2}{4} \right)^{1/2} \right],$$

где φ — угол закручивания, l_0 — рабочая длина образца, r — радиус ХТ при деформациях, превышающих единицу (см. рис. 4, б), «заваливаются» к оси абсцисс, существенно отклоняясь от прямой линии; уже при значении $t = 2$ разница составляет более 50 %. Таким образом, при обработке данных на кручение с использованием величины $\varepsilon_i^{(\ln)}$ по формуле Надаи (5) материал как бы упрочняется (в то же время при растяжении материал подчиняется закону установившейся ползучести), а это противоречит гипотезе «единой кривой».

Для использования формулы (1) необходимо принять гипотезы прямых радиусов и

плоских сечений, непротиворечивость которых проверялась экспериментально при проведении экспериментов на материале АМГ-6М ($T = 450$ °С) для $\sigma_i = 15; 20$ МПа. В сплошных круглых образцах диаметром 20 мм с рабочей длиной 42 мм просверливалось два отверстия диаметром 0,5 мм по радиусу до оси образца в середине и вблизи радиуса закругления рабочей части. В отверстия вставлялись медные проволоочки — «свидетели» и образцы закручивались до различных степеней деформаций. Последующий срез образца позволял визуально установить, что поперечные сечения образцов остаются плоскими, а радиусы прямыми.

Также гипотезы «прямых радиусов» и «плоских сечений» были проверены экспериментально на сплаве ВТ-9 и подтвердились при величине $\varepsilon_i \approx 3$.

В заключение важно отметить, что если следовать уравнениям единой кривой (2), то необходимо проверять подобие первичных кривых деформирования материала вплоть до разрушения в терминах «поврежденность — время». Процесс ползучести полностью определяется текущими значениями напряжений τ и величиной поврежденности ω , вне зависимости от того, как накоплена эта величина [5]. Следовательно, область применимости предлагаемых уравнений (3) ограничивается материалами, для которых выполняется условие существования единой кривой.

Таким образом, кинетические уравнения ползучести и повреждаемости в энергетической форме (3), с одинаковыми в обоих уравнениях функциями от параметра поврежденности (он равен нормированной удельной работе рассеяния энергии $\omega = A/A^*$), рекомендуется использовать для получения сдвиговых диаграмм материала при конечных деформациях. Значения интенсивности деформации при обработке экспериментальных данных на кручение сплошных круглых образцов в условиях ползучести, с достаточной для практического применения точностью, рекомендуется рассчитывать по формуле Одквиста.



Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ (проект № 11-08-008445-а) и Проекта № 2.13.6 Программы РАН, программы фундаментальных иссле-

дований СО РАН № III.20.3. и ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России», государственный контракт 14.740.11.0355.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Горев, Б.В. К описанию кривых деформирования при кручении [Текст]/ Б.В. Горев // Заводская лаборатория. — 1978. — № 4. — С. 1511–1514.
2. Горев, Б.В. К оценке ползучести и длительной прочности элементов конструкций по методу характеристических параметров. Сообщение 1 [Текст]/ Б.В. Горев // Проблемы прочности. — 1979. — № 4. — С. 30–36.
3. Горев, Б.В. К описанию ниспадающего участка кривой деформирования «напряжение — деформация» по кинетическим уравнениям со скалярным параметром поврежденности [Текст]/ Б.В. Горев, И.А. Банщикова // Вестник Самарского гос. техн. ун-та. Сер. Физико-математические науки. — 2008. — № 2 (17). — С. 110–117.
4. Горев, Б.В. К описанию процесса ползу-

чести и разрушения упрочняющихся материалов по кинетическим уравнениям со скалярным параметром поврежденности [Текст]/ Б.В. Горев, И.А. Банщикова // Вестник Самарского гос. техн. ун-та. Сер. Физико-математические науки. — 2009 — № 2 (19). — С. 90–98.

5. Горев, Б.В. К описанию процесса ползучести и длительной прочности по уравнениям с одним скалярным параметром повреждаемости [Текст]/ Б.В. Горев, И.Д. Клопотов // Прикладная механика и теоретическая физика. — 1994. — Т. 35. — № 5 (207). — С. 92–102.

6. Работнов, Ю.Н. Ползучесть элементов конструкций [Текст] / Ю.Н. Работнов. — М.: Наука, 1966. — 752 с.

7. Надаи, А. Пластичность и разрушение твердых тел [Текст]: В 2 тт. Т. 2. / А. Надаи. — М.: Мир, 1969. — 853 с.

REFERENCES

1. Gorev B.V. K opisaniju krivyh deformirovaniya pri kruchenii. *Zavodskaja laboratorija*, 1978, № 4, pp. 1511–1514. (rus)
 2. Gorev B.V. K ocenke polzuchesti i dlitel'noj prochnosti jelementov konstrukcij po metodu harakteristicheskix parametrov. Message 1. *Problemy prochnosti*, 1979, № 4, pp. 30–36. (rus)
 3. Gorev B.V., Bانشhikova I.A. K opisaniju nispadajushhego uchastka krivoj deformirovaniya «napryazhenie—deformacija» po kineticheskim uravnenijam so skaljarnym parametrom povrezhdennosti. *Vestnik Samarskogo gos. tehn. un-ta. Ser. Fiziko-matematicheskie nauki*, 2008, № 2 (17), pp. 110–117. (rus)
- Gorev B.V., Bانشhikova I.A. K opisaniju pro-

cessa polzuchesti i razrushenija uprochnjajushhihsja materialov po kineticheskim uravnenijam so skaljarnym parametrom povrezhdennosti. *Vestnik Samarskogo gos. tehn. un-ta. Ser. Fiziko-matematicheskie nauki*, 2009, № 2 (19), pp. 90–98. (rus)

5. Gorev B.V., Klopotov I.D. K opisaniju processa polzuchesti i dlitel'noj prochnosti po uravnenijam s odnim skaljarnym parametrom povrezhdaemosti. *Prikladnaja mehanika i teoreticheskaja fizika*, 1994, Vol. 35, № 5 (207), pp. 92–102. (rus)

6. Rabotnov Yu.N. Polzuchest' elementov konstrukcij. Moscow, Nauka, 1966, 752 p. (rus)

7. Nadai A. Plastichnost' i razrushenie tverdykh tel. Moscow, Mir, 1969, 853 p. (rus)

ЛАРИЧКИН Алексей Юрьевич — младший научный сотрудник лаборатории статической прочности Института гидродинамики им. М.А. Лаврентьева СО РАН.

630090, г. Новосибирск, пр. Ак. Лаврентьева, 15
larichking@gmail.com

ГОРЕВ Борис Васильевич — доктор технических наук, ведущий научный сотрудник лаборатории статической прочности Института гидродинамики им. М.А. Лаврентьева СО РАН.

630090, г. Новосибирск, пр. Ак. Лаврентьева, 15
gorevbv@yandex.ru

УДК 532.517.4 : 532.529.5 + 63

П.Г. Ганин, А.А. Шмидт

ОЦЕНКА ДИАМЕТРА НАИМЕНЬШИХ ДОЧЕРНИХ КАПЕЛЬ С УЧЕТОМ ЧИСЛА ИСПЫТАНИЙ НА ДРОБЛЕНИЕ НАИБОЛЬШИХ КАПЕЛЬ В АППАРАТЕ С ПЕРЕМЕШИВАНИЕМ

P.G. Ganin, A.A. Schmidt

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, Russia

ESTIMATION OF DIAMETER OF THE SMALLEST SECONDARY DROPLETS TAKING INTO CONSIDERATION A NUMBER OF BREAK UP TESTS OF THE LARGEST DROPLETS IN THE APPARATUS WITH STIRRING

Работа посвящена обоснованию наличия наиболее мелких капель полидисперсной эмульсии в системах типа жидкость – жидкость с перемешиванием. Предложена модель образования дочерних капель наименьшего размера: дробление наиболее крупных капель на три дочерние с учетом числа испытаний на дробление за время пребывания капель в зоне мешалки. Расчетные значения сопоставлены с известными экспериментальными данными.

ТУРБУЛЕНТНЫЙ ПОТОК, ЖИДКОСТЬ – ЖИДКОСТЬ, ДРОБЛЕНИЕ КАПЕЛЬ, ЧИСЛО ИСПЫТАНИЙ, МЕЛКОДИСПЕРСНАЯ ФРАКЦИЯ, МЕХАНИЗМ ОБРАЗОВАНИЯ.

This investigation is devoted to substantiation of the smallest droplets presence in polydisperse emulsion in a liquid – liquid system with stirring. A model of the smallest size secondary droplets formation is proposed: a break up of the largest droplets in a three secondary droplets, the model taking into consideration the number of tests per a break up during a time of droplets presence in the stirring zone. Calculated values are compared with known experimental data.

TURBULENT FLOW, LIQUID – LIQUID, BREAK UP OF DROPLETS, NUMBER OF TESTS, FINE FRACTION, MECHANISM OF FORMATION.

Настоящая работа посвящена уточнению метода оценки диаметра наименьших капель, образуемых в аппарате с механическим перемешиванием систем типа жидкость – жидкость. В наших предыдущих работах было показано, что два фактора – число n испытаний на дробление за время τ пребывания капель в зоне мешалки [1] и дробление капель наибольшего диаметра $d_{\max}$ полидисперсной эмульсии [2] – определяют диаметр $d_{\text{кр.}\tau(zm)}$ наименьших капель, устойчивых в аппарате, а также диаметр $(d_{\text{дм}})_{\min(f)}$ наименьших дочерних капель. Для аппарата стандартного конструктивного типа с турбинной мешалкой и разделительными перегородками (при

заполнении 0,5) расчетные значения этих величин составили

$$d_{\text{кр.}\tau(zm)} \approx 0,63d_{\text{кр}}; (d_{\text{дм}})_{\min(f)} \approx 0,43d_{\text{кр}},$$

где $d_{\text{кр}}$ – диаметр наибольших капель, устойчивых в аппарате («критический диаметр»). Однако в полидисперсной эмульсии присутствует мелкодисперсная фракция капель, диаметр которых меньше значения $(d_{\text{дм}})_{\min(f)}$, оцененного в работе [2]. Причины этого явления оставались невыясненными. Можно ожидать, что совместный учет обоих приведенных выше обстоятельств – дробления наиболее крупных капель и числа испытаний – объяснит образование капель меньшего диаметра.



Диаметр малых дочерних капель в одиночном испытании

Диаметр $d_{\text{дм}}$ малых дочерних капель, образуемых при дроблении материнской капли произвольного диаметра d на три дочерние, в соответствии с предложенной моделью «тройной капли» [2], оценивается на основе приближенного уравнения общего вида:

$$\rho \frac{(v'_3)^2}{2} \approx \frac{4\sigma_{\text{жж}}}{d_{\text{дм}}}, \quad (1)$$

где ρ — плотность жидкости сплошной фазы; $\sigma_{\text{жж}}$ — поверхностное натяжение на границе раздела жидкость — жидкость; v'_3 — пульсационная скорость масштаба $\lambda = \lambda_3$; λ_3 — линейный масштаб тройной капли. При этом величины $d_{\text{дм}}$, d и λ_3 связаны зависимостью

$$\lambda_3 = \lambda_3(d, d_{\text{дм}}) = 2d_{\text{дм}} + (d^3 - 2(d_{\text{дм}})^3)^{1/3}.$$

Пусть $v_3^{*(1)z}$ — пульсационная скорость в одиночном испытании (среднеквадратичное значение, усредненное за период одиночной пульсации) масштаба $\lambda = \lambda_3$ в некоторой фиксированной зоне аппарата. Подстановка $v'_3 = v_3^{*(1)z}$ в уравнение (1) дает соотношение для оценки диаметра $d_{\text{дм}}$ малых дочерних капель, образованных в данной зоне аппарата при дроблении материнской капли произвольного диаметра d в одиночном испытании:

$$\rho \frac{(v_3^{*(1)z})^2}{2} \approx \frac{4\sigma_{\text{жж}}}{d_{\text{дм}}}. \quad (2)$$

Линейные размеры капель удобно сопоставлять с критическим диаметром $d_{\text{кр}}$, который оценивается из критического балансового условия [3–5], представленного следующим образом [2]:

$$\rho \frac{(v_{d_{\text{кр}}}^{*zm})^2}{2} \approx \frac{4\sigma_{\text{жж}}}{d_{\text{кр}}}. \quad (3)$$

Здесь $(v_{d_{\text{кр}}}^{*zm})_{\text{max}}$ — максимальная величина пульсаций скорости масштаба $\lambda = d_{\text{кр}}$ в зоне мешалки; величина $(v_{d_{\text{кр}}}^{*zm})_{\text{max}}$ оценивается зависимостью

$$(v_{d_{\text{кр}}}^{*zm})_{\text{max}} \approx 3v_{d_{\text{кр}}}^{*zm}, \quad (4)$$

где $v_{d_{\text{кр}}}^{*zm}$ — пульсационная скорость (среднеквадратичное значение, усредненное за

достаточно большой промежуток времени) масштаба $\lambda = d_{\text{кр}}$ в зоне мешалки.

С учетом условия (3) уравнение (2) можно записать в приведенном виде:

$$\left[\frac{v_3^{*(1)z}}{(v_{d_{\text{кр}}}^{*zm})_{\text{max}}} \right]^2 \approx \frac{1}{d_{\text{дм}}^*}, \quad (5)$$

где $d_{\text{дм}}^* = d_{\text{дм}}/d_{\text{кр}}$ — приведенный (безразмерный) диаметр.

В работах [6, 7] показано, что для линейного масштаба движения $\lambda_0 < \lambda < l$ (l — масштаб наибольших пульсаций, λ_0 — внутренний масштаб турбулентности) локальное значение v'_λ зависит от локального значения ε_0^L скорости диссипации энергии в единице массы жидкости и линейного масштаба λ :

$$(v'_\lambda)^2 \approx (\varepsilon_0^L \lambda)^{2/3}. \quad (6)$$

Подстановка оценки (6) в приближенное уравнение (5) приводит к соотношению:

$$d_{\text{дм}}^* \approx \left(\frac{3}{\gamma_3^z} \right)^2 \left(\frac{1}{\varepsilon_z^* \lambda_3^*} \right)^{2/3}, \quad (7)$$

где $\varepsilon_z^* = \varepsilon_z^z / \varepsilon_0^{zm}$ — приведенная (безразмерная) скорость диссипации энергии в зоне аппарата; ε_z^z , ε_0^{zm} — значения ε_0^L в зоне аппарата и зоне мешалки, соответственно; $\gamma_3^z = v_3^{*(1)z} / v_3^{*z}$ — приведенная (безразмерная) пульсационная скорость в одиночном испытании масштаба $\lambda = \lambda_3$ в зоне аппарата; v_3^{*z} — пульсационная скорость (среднеквадратичное значение, усредненное за достаточно большой промежуток времени) масштаба $\lambda = \lambda_3$ в зоне аппарата; $\lambda_3^* = \lambda_3 / d_{\text{кр}} = \lambda_3^*(d^*, d_{\text{дм}}^*)$ — приведенный (безразмерный) линейный масштаб.

В работе [2] принималось соотношение:

$$(v_3^{*zm})_{\text{max}} \approx 3v_3^{*zm}, \quad (8)$$

в результате чего из уравнения (7) следовала оценка приведенного диаметра наименьших дочерних капель

$$(d_{\text{дм}}^*)_{\text{min}(f)} \approx [\lambda_3^*(d_{\text{max}}^*, (d_{\text{дм}}^*)_{\text{min}(f)})]^{-2/3}. \quad (9)$$

Учет числа испытаний на дробление в зоне мешалки

Вывод соотношений (3) и (9) для диаме-

тров $d_{кр}$ и $(d_{дм}^*)_{\min(f)}$ исходит из оценок (4) и (8), полученных в предположении, что амплитуда пульсационной скорости является случайной величиной, распределенной, в первом приближении, по нормальному закону [8], а для оценки максимального значения $(v'_{\lambda})_{\max}$ пульсаций скорости, как и в работах [5, 8], принимается соотношение

$$(v'_{\lambda})_{\max} \approx 3v'_{\lambda}. \quad (10)$$

Постановка задачи учета числа n испытаний в зоне мешалки заставляет обратить внимание на два обстоятельства, связанных с принимаемым в соотношении (8) значением $(v_3^{*zm})_{\max}$, фактически полученным на основе оценки (10).

Во-первых, оценка (10) получена из условия, что выполнение неравенства $v'_{\lambda} < (v'_{\lambda})_{\max}$ является практически достоверным [9]. Таким образом, следующие из нее оценки (4) и (8) предполагают условия практической достоверности выполнения соответствующих неравенств:

$$v_3^{*zm} < (v_3^{*zm})_{\max}; \quad v'_{dкр} < (v'_{dкр})_{\max}.$$

Во-вторых, оценка (10) определяет величину максимальных пульсаций скорости масштаба λ , которыми величина v'_{λ} ограничена (практически достоверно) в одиночном испытании — за промежуток времени, равный характерному периоду T_{λ} пульсаций масштаба λ . Однако поскольку капли, вовлекаемые с потоком жидкости в зону мешалки, подвергаются не одиночному, а множественным испытаниям, то принимаемая в расчет величина максимальных пульсаций должна, очевидно, оцениваться с учетом числа испытаний.

Оценку диаметра $d_{дм(\tau)}$ наименьших дочерних капель, образуемых в ядре турбулентного потока жидкости при дроблении наиболее крупных капель полидисперсной эмульсии на три дочерние, с учетом числа n испытаний на дробление за время τ их пребывания в зоне мешалки аппарата с перемешиванием, получим из уравнения (1), полагая в нем

$$d_{дм} = d_{дм(\tau)}; \quad d = d_{\max}; \quad v'_3 = (v_3^{*zm})_{\max(\tau)},$$

где $(v_3^{*zm})_{\max(\tau)}$ — максимальная пульсационная скорость масштаба $\lambda = \lambda_3 = \lambda_3(d_{\max}, d_{дм(\tau)})$

при числе n испытаний в зоне мешалки. При указанных условиях уравнение (1) принимает следующий вид:

$$\rho \frac{[(v_3^{*zm})_{\max(\tau)}]^2}{2} \approx \frac{4\sigma_{жж}}{d_{дм(\tau)}}. \quad (11)$$

Оценку приведенного диаметра $d_{дм(\tau)}^* = (d_{дм})_{(\tau)}/d_{кр}$ получим из уравнения (7) при подстановке соответствующих значений: $\gamma_3^z = (\gamma_3^{*zm})_{\max(\tau)}$, $\varepsilon_z^* = \varepsilon_{zm}^* \equiv 1$, $d^* = d_{\max}^*$.

Полагая $d_{дм}^* = d_{дм(\tau)}^*$, имеем:

$$d_{дм(\tau)}^* \approx \left[\frac{3}{(\gamma_3^{*zm})_{\max(\tau)}} \right]^2 \left(\frac{1}{\lambda_3^*(d_{\max}^*, d_{дм(\tau)}^*)} \right)^{2/3}, \quad (12)$$

где $(\gamma_3^{*zm})_{\max(\tau)} = (v_3^{*zm})_{\max(\tau)}/v_3^{*zm}$.

Таким образом, как следует из уравнения (12), для численной оценки приведенного диаметра $d_{дм(\tau)}^*$ необходимо знать величины $(\gamma_3^{*zm})_{\max(\tau)}$ и $d_{\max}^*$.

Величину $(v_3^{*zm})_{\max(\tau)}$ найдем с учетом оценок, принятых для $(v'_{\lambda})_{\max}$ и $(v_{\lambda}^{*zm})_{\max}$. Как упомянуто выше, соотношение (10) для $(v'_{\lambda})_{\max}$ получено из условия, что вероятность выполнения неравенства $v'_{\lambda} < (v'_{\lambda})_{\max}$ в одиночном испытании составляет:

$$p(v'_{\lambda} < (v'_{\lambda})_{\max}) \approx 0,9972. \quad (13)$$

Это значение случайного события принято считать практически достоверным [9].

Для оценки величины $(v_3^{*zm})_{\max(\tau)}$ будем исходить из аналогичного условия, но полагая при этом, что практически достоверным является выполнение неравенства $v_3^{*zm} < (v_3^{*zm})_{\max(\tau)}$ при числе n испытаний за время τ пребывания капель в зоне мешалки:

$$P_n(v_3^{*zm} < (v_3^{*zm})_{\max(\tau)}) \approx 0,9972. \quad (14)$$

Поскольку одиночные испытания являются независимыми событиями, величину $P_n(v_3^{*zm} < (v_3^{*zm})_{\max(\tau)})$ можно представить в виде:

$$P_n((v_3^{*zm} < (v_3^{*zm})_{\max(\tau)}) = \\ = [p(v_3^{*zm} < (v_3^{*zm})_{\max(\tau)})]^n, \quad (15)$$

где $p(v_3^{*zm} < (v_3^{*zm})_{\max(\tau)})$ — вероятность выполнения условия $v_3^{*zm} < (v_3^{*zm})_{\max(\tau)}$ в одиночном испытании в зоне мешалки.

Исходя из свойств пульсационной скорости [8], допускающих применение нормального распределения [9], мы получаем следующую оценку вероятности:

$$p(v_3^{zm} < (v_3^{zm})_{\max(\tau)}) = \Phi_L \left(\frac{(\gamma_3^{zm})_{\max(\tau)}}{\sqrt{2}} \right), \quad (16)$$

где $\Phi_L(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z \exp(-t^2) dt$ — функция Лапласа.

Приближенное уравнение (14) с учетом соотношений (15) и (16) примет вид:

$$\left[\Phi_L \left(\frac{(\gamma_3^{zm})_{\max(\tau)}}{\sqrt{2}} \right) \right]^n \approx 0,9972. \quad (17)$$

На рис. 1 представлена зависимость величины $(\gamma_3^{zm})_{\max(\tau)}$ от числа n испытаний на дробление за время пребывания капель в зоне мешалки, полученная при численном решении уравнения (17) для широкого интервала значений $n = 1 \div 10000$. Расчетная зависимость величины $(\gamma_3^{zm})_{\max(\tau)}$ от числа n испытаний (см. рис. 1) аппроксимируется логарифмической функцией (достоверность аппроксимации $R^2 = 0,9953$):

$$(\gamma_3^{zm})_{\max(\tau)} \approx 0,5296 \lg n + 3,0778. \quad (18)$$

Как следует из рис. 1, с увеличением числа n от единицы до 10000, величина $(\gamma_3^{zm})_{\max(\tau)}$ возрастает от 3,0 до 5,1, что соответствует изменению величины $(v_3^{zm})_{\max(\tau)}$ от $3,0v_3^{zm}$ до $5,1v_3^{zm}$. Можно показать, что

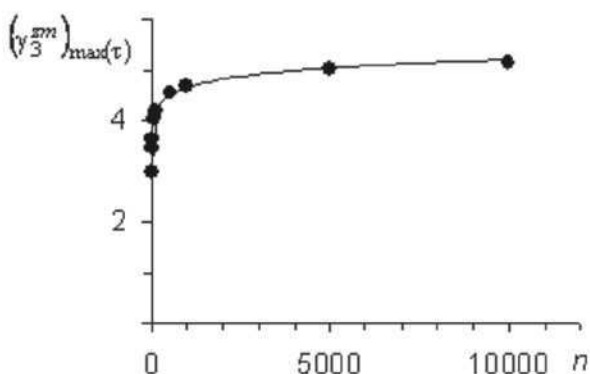


Рис. 1. Расчетная зависимость величины $(\gamma_3^{zm})_{\max(\tau)}$ от числа испытаний на дробление за время пребывания капель в зоне мешалки. Точки — численное решение уравнения (17), линия — аппроксимация уравнением (18)

при числе испытаний $n = 1$ из выражений (17) и (18) следует, что $(\gamma_3^{zm})_{\max(\tau)} \approx 3,0$ и $(\gamma_3^{zm})_{\max(\tau)} \approx 3,0778$. Это соответствует оценке максимального значения пульсационной скорости (10), принятой в работах [5, 8].

В практических расчетах число n испытаний можно заменить его средним значением $\bar{n}$, которое выражается отношением среднего времени τ пребывания капель в зоне мешалки к характерному времени T_λ пульсаций масштаба λ : $\bar{n} \approx \tau/T_\lambda$. Для масштаба $\lambda = \lambda_3$ получена оценка $\bar{n} \approx K_f (D_f/\lambda_3)^{2/3}$ [10], откуда

$$\bar{n} \approx K_f \left(\frac{D_f^*}{\lambda_3^*} \right)^{2/3}, \quad (19)$$

где D_f — диаметр аппарата; $D_f^* = D_f/d_{кр}$ — приведенный диаметр аппарата; K_f — коэффициент, зависящий от конструктивного типа аппарата и мешалки, а также коэффициента заполнения.

Число $\bar{n}$ для наибольших капель, дробящихся в зоне мешалки на три дочерние с образованием малых дочерних капель диаметром $d_{\text{дм}(\tau)}$, оценим из уравнения (19), полагая $d^* = d_{\text{макс}}^*$, $d_{\text{дм}}^* = d_{\text{дм}(\tau)}^*$:

$$\bar{n} \approx K_f \left[\frac{D_f^*}{\lambda_3^* (d_{\text{макс}}^* d_{\text{дм}(\tau)}^*)} \right]^{2/3}. \quad (20)$$

Таким образом, как следует из системы приближенных соотношений (12), (18) и (20), величины $d_{\text{дм}(\tau)}^*$ и $(\gamma_3^{zm})_{\max(\tau)}$ зависят от совокупности параметров: D_f , K_f , $d_{кр}$ и $d_{\text{макс}}$. Для аппаратов и мешалок различных конструктивных типов можно теоретически оценить коэффициент K_f , а для оценки диаметров $d_{кр}$ и $d_{\text{макс}}$, помимо этого, необходимо знать физико-химические параметры системы: $\sigma_{\text{жж}}$, ρ , ε_0 или $\sigma_{\text{жж}}$, ρ и число n_0 оборотов мешалки в единицу времени [5]. Для некоторых типов аппаратов и мешалок диаметры $d_{кр}$ и $d_{\text{макс}}$ установлены экспериментально [5].

Приложение полученных оценок к аппарату с турбинной мешалкой и разделительными перегородками

Распределение капель по размерам. Для

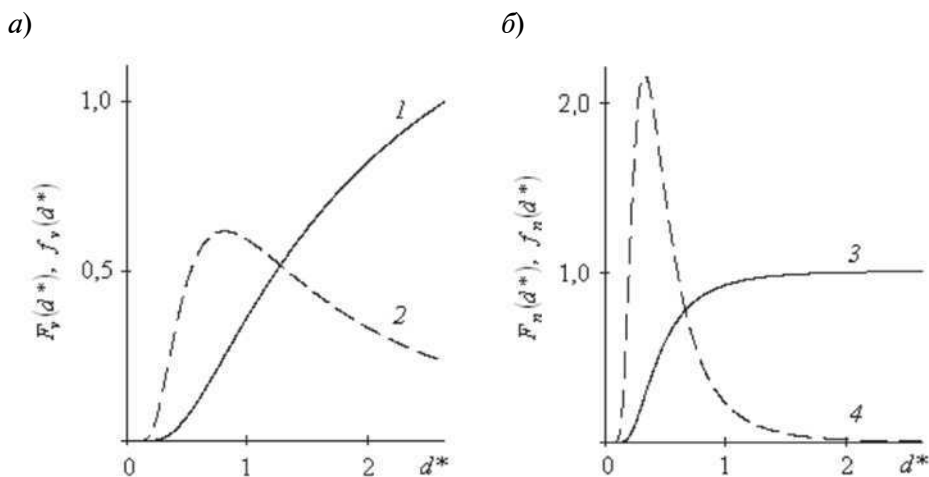


Рис. 2. Функции распределения капель по размеру (приведенному диаметру d^*):
 а – распределение объема; б – распределение счетного числа;
 1, 3 – интегральные функции $F_v(d^*)$, $F_n(d^*)$; 2, 4 – дифференциальные функции $f_v(d^*)$, $f_n(d^*)$

аппарата данного стандартного конструктивного типа установлена эмпирическая интегральная функция распределения объема дисперсной фазы по размеру капель [11] (рис. 2, а):

$$\begin{cases} F_v(d^*) = \exp\left(0,613 - \frac{1,62}{d^*}\right), & d^* \leq d_{\max}^*; \\ F_v(d^*) = 1, & d^* > d_{\max}^*, \end{cases} \quad (21)$$

где $d_{\max}^* = d_{\max}/d_{\text{п.о}}$ – безразмерный диаметр наибольших капель; $d_{\max}^* \approx 2,64$; $d_{\text{п.о}}$ – средний поверхностно-объемный диаметр капель.

Как отмечается в работе [5], рассчитанная на основе уравнения (3) величина $d_{\text{кр}}$ удовлетворительно согласуется с экспериментальной величиной $d_{\text{п.о}}$, что допускает приближение

$$d_{\text{кр}} \approx d_{\text{п.о}}. \quad (23)$$

В работе [11] на основе функции (21) получена дифференциальная функция распределения объема $f_v(d^*)$, а в работе [12] – интегральная $F_n(d^*)$ и дифференциальная $f_n(d^*)$ функции распределения счетного числа капель по размеру (см. рис. 2):

$$\begin{cases} f_v(d^*) = \frac{1,62}{(d^*)^5} \exp\left(0,613 - \frac{1,62}{d^*}\right), & d^* \leq d_{\max}^*; \\ f_v(d^*) = 0, & d^* > d_{\max}^*; \end{cases}$$

$$\begin{cases} F_n(d^*) = \frac{0,091[4,24 + 7,87d^* + 9,72(d^*)^2 + 6(d^*)^3]}{(d^*)^3} \times \\ \times \exp\left(0,613 - \frac{1,62}{d^*}\right), & d^* \leq d_{\max}^*; \\ F_n(d^*) = 1, & d^* > d_{\max}^*; \end{cases} \quad (24)$$

$$\begin{cases} f_n(d^*) = \frac{0,624 + 2,68 \cdot 10^{-3}d^* + 5,82 \cdot 10^{-4}(d^*)^2}{(d^*)^5} \times \\ \times \exp\left(0,613 - \frac{1,62}{d^*}\right), & d^* \leq d_{\max}^*; \\ f_n(d^*) = 0, & d^* > d_{\max}^*. \end{cases} \quad (25)$$

Наиболее вероятный диаметр капель. Значение диаметра $d_{\text{в}}^*$, при котором функция $f_n(d^*)$ принимает максимальное значение

$$f_n(d_{\text{в}}^*) = [f_n(d^*)]_{\max},$$

находится из условия:

$$df_n(d^*)/d(d^*) = 0; \quad d^2 f_n(d^*)/d(d^*)^2 < 0.$$

Для функции, определенной выражениями (25), получим:

$$d_{\text{в}}^* \approx 0,324. \quad (26)$$

Экспериментальный диаметр $d_{\text{мин}}^*$ наименьших капель. Этот диаметр определим из условия, что доля счетного числа капель

диаметром $d^* < d_{\min}^*$ пренебрежимо мала и имеет значение

$$F_n(d^*) = 0,0028. \quad (27)$$

Из условия (27) и выражений (24) следует оценка:

$$d_{\min}^* \approx 0,14. \quad (28)$$

Таким образом, диаметры капель полидисперсной эмульсии в рассматриваемом аппарате соответствуют интервалу $0,14 \leq d^* \leq 2,64$ (см. оценки (22) и (28)). Отметим, что теоретически предсказуемый диаметр $d_{кр}$ [5] существенно больше наиболее вероятного диаметра капель $d_v = d_v^* d_{кр} \approx 0,324 d_{кр}$ и тем более превосходит диаметр

$$d_{\min} = d_{\min}^* d_{кр} \approx 0,14 d_{кр}$$

наименьших капель (см. оценки (23), (26), (28)).

Расчетный диаметр наименьших дочерних капель. Для аппарата данного конструктивного типа установлены значения $K_f \approx 0,24$ [10] и $d_{\max}^*$ (см. оценку (22)). Для этого случая приближенные уравнения (12) и (20) примут вид:

$$d_{\text{дм}(\tau)}^* \approx \left(\frac{3}{(\gamma_3^{\text{зм}})_{\text{макс}(\tau)}} \right)^2 \left(\frac{1}{\lambda_3^*(2,64, d_{\text{дм}(\tau)}^*)} \right)^{2/3}, \quad (29)$$

где величина $(\gamma_3^{\text{зм}})_{\text{макс}(\tau)}$ определена аппроксимацией (18), и

$$\bar{n} \approx 0,24 \left\{ \frac{D_f^*}{\lambda_3^*(2,64, d_{\text{дм}(\tau)}^*)} \right\}^{2/3}. \quad (30)$$

На рис. 3 показана связь приведенных диаметров $d_{\text{дм}(\tau)}^*$ и D_f^* , определяемая приближенным уравнением (29) с учетом приближения $n \approx \bar{n}$ и оценок (18), (30). Интервал охватываемых значений $D^* = 90 - 10^7$ соответствует различным диаметрам аппарата и капель: $D_f = 0,1 - 10$ м, $d_{кр} = 10^{-3} - 10^{-7}$ м.

Как следует из рис. 3, расчетные значения приведенного диаметра $d_{\text{дм}(\tau)}^*$ дочерних капель при изменении приведенного диаметра D^* аппарата от 90 до 10^7 изменяются в интервале 0,17 – 0,38, при этом зависимость диаметров $d_{\text{дм}(\tau)}^*$ и D^* с достоверностью $R^2 = 0,9999$ аппроксимируется функцией:

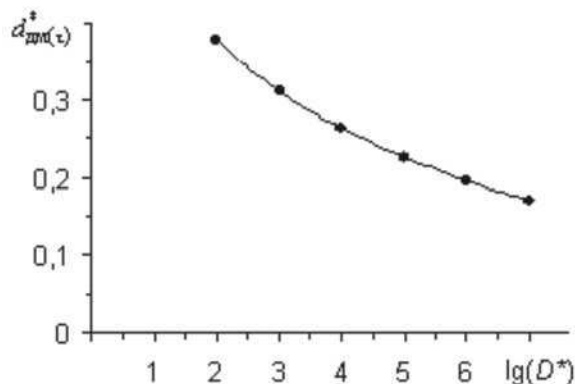


Рис. 3. Рассчитанная зависимость диаметра наименьших дочерних капель от диаметра аппарата (приведенные величины)

$$d_{\text{дм}(\tau)}^* \approx 0,494 - 0,167 \ln(\lg D^*), \quad (31)$$

$$90 \leq D^* \leq 10^7.$$

Приближенное соотношение (31) позволяет выразить диаметр $(d_{\text{дм}(\tau)}^*)_{\tau}$ в виде зависимости $d_{\text{дм}(\tau)}^* \approx f_d(D_f^*) = f_d(D_f/d_{кр}) = f_d(D_f, d_{кр})$. Однако в ряде случаев диаметр $d_{кр}$ удобно выразить через физико-химические параметры системы и представить диаметр $d_{\text{дм}(\tau)}^*$ в виде зависимостей:

$$d_{\text{дм}(\tau)}^* \approx f_{\varepsilon}(D_f, \dots, \varepsilon_0) \text{ или } d_{\text{дм}(\tau)}^* \approx f_n(D_f, \dots, n_{\omega}),$$

где ε_0 – среднее по аппарату значение скорости диссипации энергии, n_{ω} – число оборотов мешалки в единицу времени.

Выражение диаметра наименьших дочерних капель через физико-химические параметры системы. Диаметр $d_{кр}$ капель в аппарате данного конструктивного типа определяется известным приближенным соотношением [5]:

$$d_{кр} \approx 0,185 \left(\frac{\sigma_{\text{жж}}}{\rho} \right)^{0,6} \varepsilon_0^{-0,4}. \quad (32)$$

Среднее по аппарату значение скорости диссипации энергии ε_0 можно выразить через число n_{ω} оборотов мешалки в единицу времени и диаметр d_m внешних кромок мешалки:

$$\varepsilon_0 \sim n_{\omega}^3 d_m^2.$$

Для аппаратов данного конструктивного типа $d_m = 0,4 D_f$ [5], при коэффициенте заполнения аппарата 0,5 получена оценка [10]

$$\varepsilon_0 \approx 0,02 n_{\omega}^3 D_f^2,$$

или

$$\varepsilon_0 \approx 0,125 n_{\omega}^3 d_m^2. \quad (33)$$

Соотношение (32) с учетом $d_m = 0,4 D_f$ и оценки (33) принимает вид:

$$\begin{aligned} d_{кр} &\approx 0,885 \left(\frac{\sigma_{жж}}{\rho} \right)^{0,6} n_{\omega}^{-1,2} D_f^{-0,8} = \\ &= 0,425 d_m We^{-0,6}, \end{aligned} \quad (34)$$

где $We = (\rho/\sigma_{жж}) n_{\omega}^2 d_m^3$ — число Вебера для мешалки.

Принимая, как и ранее, $d_m = 0,4 D_f$, из зависимости (34) получим

$$D^* \equiv D_f/d_{кр} \approx 5,882 (We)^{0,6},$$

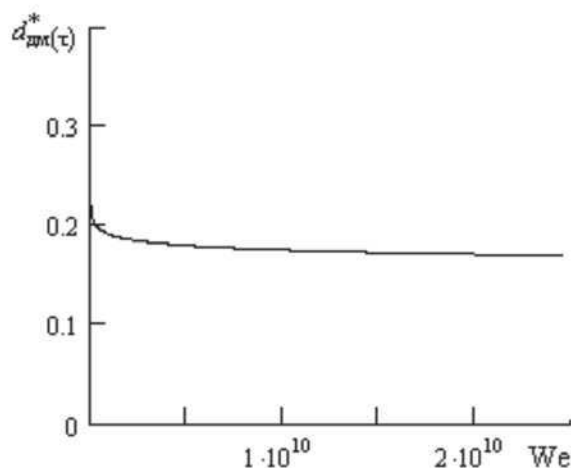
в результате чего соотношение (31) примет вид:

$$\begin{aligned} d_{дм(\tau)}^* &\approx 0,494 - 0,167 \ln [0,765 + 0,6 \lg(We)], \\ 95 &\leq We \leq 2,5 \cdot 10^{10}. \end{aligned} \quad (35)$$

Зависимость (35) представлена на рис. 4, откуда видно, что расчетные значения диаметра $d_{дм(\tau)}^*$ уменьшаются с увеличением числа Вебера, в частности $d_{дм(\tau)}^* \approx 0,17$ при $We \approx 2,5 \cdot 10^{10}$.

Соотношения (31), (32), (35) представляют собой искомые функциональные зависимости:

а)



б)

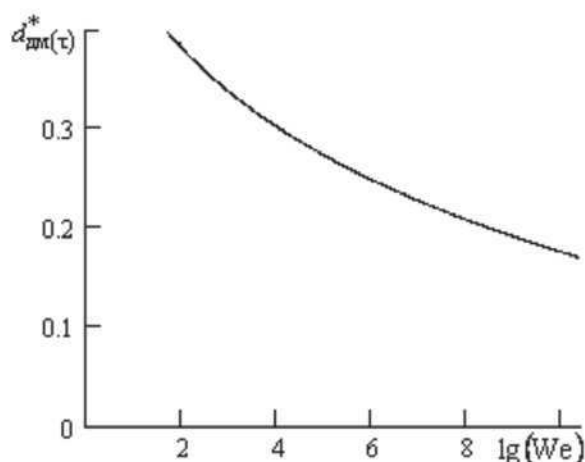


Рис. 4. Рассчитанная зависимость приведенного диаметра наименьших дочерних капель от числа Вебера для мешалки:

а — в линейных координатах; б — в полулогарифмических координатах

$$d_{дм(\tau)}^* \approx f_{\varepsilon}(D_f, \sigma_{жж}, \rho, \varepsilon_0);$$

$$d_{дм(\tau)}^* \approx f(We) = f_n(D_f, \sigma_{жж}, \rho, n_{\omega}),$$

позволяющие оценить диаметр $d_{дм(\tau)}^*$ для конкретных систем с известными физико-химическими параметрами.

Оценка диаметра наименьших дочерних капель для системы вода — гексадекан. Рассмотрим три модельные системы, которые перемешивают при 20 °С:

первая (I) — это вода — гексадекан;

вторая (II) и третья (III) — это вода — гексадекан + поверхностно активные вещества (ПАВ);

при этом для поверхностного натяжения жидкостей сплошной фазы примем:

$$\sigma_1 = \sigma_{вода}; \quad \sigma_2 = 55 \cdot 10^{-3} \text{ Н/м};$$

$$\sigma_3 = 40 \cdot 10^{-3} \text{ Н/м}.$$

Известно, что

$$\sigma_{гек} = 27,64 \cdot 10^{-3} \text{ Н/м};$$

$$\sigma_{вода} = 72,75 \cdot 10^{-3} \text{ Н/м}; \quad \rho_{вода} \approx 10^3 \text{ кг/м}^3 \text{ [13]}.$$

Технологические процессы с использованием таких систем проводятся при достаточно интенсивном механическом перемешивании и добавлении ПАВ для образования мелкодисперсной эмульсии, а также для вовлечения менее плотной жидкости в перемешиваемый объем и достаточно равномерного распределения дис-

персной фазы по объему [14].

Межфазные натяжения жидкость – жидкость оценим по приближенному уравнению Антонова [15]:

$$\sigma_{жж} \approx \sigma_{ж1} - \sigma_{ж2}.$$

Для систем I–III получим:

$$\sigma_{жж1} \approx \sigma_{вода} - \sigma_{гекс} \approx 45,11 \cdot 10^{-3} \text{ Н/м};$$

$$\sigma_{жж2} \approx \sigma_2 - \sigma_{гекс} \approx 27,36 \cdot 10^{-3} \text{ Н/м};$$

$$\sigma_{жж3} \approx \sigma_3 - \sigma_{гекс} \approx 12,36 \cdot 10^{-3} \text{ Н/м}.$$

Значения числа Вебера We и соответствующие диаметры $d_{дм(\tau)}^*$, рассчитанные по уравнению (36), для систем I–III при числе оборотов мешалки $n_{\omega} = 500$ и 2000 об/мин ($n_{\omega} \approx 8,3$ и 333 об/с) приведены в табл. 2.

Как следует из данных таблиц, при достаточно интенсивном механическом перемешивании, когда

$$500 \leq n_{\omega} \leq 2000 \text{ об/мин}$$

(соответствует $98 \leq We \leq 5,7 \cdot 10^6$), расчетные значения $d_{дм(\tau)}^*$ для модельных систем лежат в интервале $0,23 \leq d_{дм(\tau)}^* \leq 0,38$.

Таким образом, в рамках разработанной ранее модели тройной капли совместный учет возможности дробления наиболее крупных капель полидисперсной эмульсии и числа испытаний этих капель на дробление за время пребывания в зоне мешалки позволяет уточнить диаметр наиболее мелких капель эмульсии. Для аппарата стандартного конструктивного типа с турбинной мешалкой и разделительными перегородками получены зависимости приведенного диаметра $d_{дм(\tau)}^*$ наименьших дочерних капель от диаметра D_f аппарата и диаметра $d_{кр}$ наибольших капель, устойчивых в аппарате, а также от числа Вебера We для мешалки.

Таблица 1

Рассмотренные модельные системы жидкостей
в аппарате с перемешиванием

Номер	Система	$\sigma_{жж}$, мН/м
I	Вода + гексадекан	45,11
II	Та же + ПАВ-1	27,36
III	Та же + ПАВ-2	12,36

Обозначения: $\sigma_{жж}$ – поверхностное натяжение на границе раздела жидкость – жидкость; ПАВ – поверхностно-активное вещество

Таблица 2

Расчетные значения числа Вебера (We) для мешалки и приведенного диаметра ($d_{дм(\tau)}^*$)
наименьших дочерних капель для различных модельных систем

Параметр аппарата		We			$d_{дм(\tau)}^*$		
D_f , м	n_{ω} , об/мин	I	II	III	I	II	III
0,10	500	98	162	350	0,38	0,37	0,36
	2000	$1,6 \cdot 10^5$	$2,6 \cdot 10^5$	$5,8 \cdot 10^5$	0,27	0,26	0,25
0,15	500	333	548	$1,2 \cdot 10^3$	0,36	0,35	0,33
	2000	$5,3 \cdot 10^5$	$8,8 \cdot 10^5$	$1,9 \cdot 10^6$	0,25	0,25	0,24
1,00	500	$9,8 \cdot 10^4$	$1,6 \cdot 10^5$	$3,6 \cdot 10^5$	0,27	0,27	0,26
	2000	$1,6 \cdot 10^6$	$2,6 \cdot 10^6$	$5,7 \cdot 10^6$	0,24	0,24	0,23

Примечание: Модельная система включает параметры аппарата и тип жидкости в нем (см. табл. 1).

Обозначения: D_f – диаметр аппарата, n_{ω} – число оборотов мешалки.

При числах Вебера, лежащих в интервале $98 \leq We \leq 5,7 \cdot 10^6$, расчетные значения $d_{\text{лм}}^* \approx 0,23 - 0,38$, а при $We \approx 1,1 \cdot 10^{10}$ — $d_{\text{лм}}^* \approx 0,17$. Эти оценки диаметра $d_{\text{лм}}^*$ удовлетворительно согласуются с экспериментальными значениями диаметра $d_{\text{мин}}^* \approx 0,14$ наименьших капель и наиболее вероятным диаметром $d_{\text{в}}^* \approx 0,324$ капель полидисперсной эмульсии, полученным на основе известных экспериментальных данных [11].

Отметим, что применительно к систе-

мам, содержащим ПАВ, предложенную модель образования капель наименьшего диаметра необходимо будет дополнить, имея в виду следующие обстоятельства. Интенсивное механическое перемешивание среды деформирует капли и сдвигает адсорбированные на каплях молекулы ПАВ к их корме [16]. Очевидно, что неравномерное распределение ПАВ на поверхности капель приведет к отличию локальных величин поверхностного натяжения на различных участках поверхности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ганин, П.Г. Механизм образования мелкодисперсной фракции капель в аппарате с механическим перемешиванием [Текст] / П.Г. Ганин // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2009. — № 4. — С. 7–13.
2. Ганин, П.Г. Теоретическая оценка диаметра наименьших капель, образованных при дроблении наибольших капель в аппарате с перемешиванием [Текст] / П.Г. Ганин, А.А. Шмидт // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-матем. науки. — 2011. — № 1. — С. 29–36.
3. Колмогоров, А.Н. О дроблении капель в турбулентном потоке [Текст] / А.Н. Колмогоров // Докл. АН СССР. — 1949. — Т. 66. — № 5. — С. 825–828.
4. Левич, В.Г. Физико-химическая гидродинамика [Текст] / В.Г. Левич. — М.: Физматгиз, 1959. — 669 с.
5. Брагинский, Л.Н. Перемешивание в жидких средах. Физические основы и методы расчета [Текст] / Л.Н. Брагинский, В.М. Барабаш, В.И. Бегачев. — Л.: Химия, 1984. — 336 с.
6. Колмогоров, А.Н. Рассеяние энергии при локальной изотропной турбулентности [Текст] / А.Н. Колмогоров // Докл. АН СССР. — 1941. — Т. 32. — № 1. — С. 19–21.
7. Обухов, А.М. О распределении энергии в спектре турбулентного потока [Текст] / А.М. Обухов // Докл. АН СССР. — 1941. — Т. 32. — № 1. — С. 22–24.
8. Брэдшоу, П. Введение в турбулентность и ее измерение [Текст] / П. Брэдшоу. — М.: Мир, 1974. — 277 с.
9. Химельблау, Д. Анализ процессов статистическими методами [Текст] / Д. Химельблау. — М.: Мир, 1973. — 957 с.
10. Ганин, П.Г. Вероятность дробления капли в ядре турбулентного потока жидкости за время пребывания в рабочих зонах аппарата с перемешиванием [Текст] / П.Г. Ганин, А.А. Шмидт // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. — 2008. — № 6. — С. 113–120.
11. Sprow, S.B. Distribution of drop size produced in turbulent liquid — liquid dispersion [Text] / S.B. Sprow // Chem. Eng. Sci. — 1967. — Vol. 22. — P. 435–439.
12. Ганин, П.Г. Теоретическая оценка устойчивости адсорбционного взаимодействия частиц твердой и жидкой дисперсных фаз в аппарате с перемешиванием [Текст] / П.Г. Ганин // Сорбционные и хроматографические процессы. — 2006. — Т. 6. — № 3. — С. 486–497.
13. Барон, Н.М. Краткий справочник физико-химических величин. Изд. 8-е перераб. [Текст] / Н.М. Барон, А.М. Пономарева, А.А. Равдель [и др.]; под. ред. А.А. Равделя и А.А. Пономаревой. — Л.: Химия, 1983. — 232 с.
14. Кафаров, В.В. Моделирование биохимических реакторов [Текст] / В.В. Кафаров. — М.: Лесная пром-сть, 1979. — 344 с.
15. Фридрихсберг, Д.А. Курс коллоидной химии [Текст]: Учеб. для вузов. — 2-е изд. перераб. и доп. / Д.А. Фридрихсберг. — Л.: Химия, 1984. — 368 с.
16. Кафаров, В.В. Основы массопередачи [Текст]: Учеб. для вузов. — 3-е изд., перераб. и доп. / В.В. Кафаров. — М.: Высшая школа, 1979. — 439 с.

REFERENCES

1. Ganin P.G. The mechanism of fine-dispersed droplets fraction formation in the apparatus with mechanical stirring. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2009, № 4, pp. 7–13. (rus)
2. Ganin P.G., Schmidt A.A. Theoretical estimation of the diameter of the droplets formed in a breakup of the largest droplets in the process vessel



with stirring. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2011, № 1, pp. 29–36. (rus)

3. **Kolmogorov A.N.** O droblenii kapel' v turbulentnom potoke. Proceedings of the USSR Academy of Sciences, 1949, Vol. 66, № 5, pp. 825–828. (rus)

4. **Levich V.G.** Fiziko-khimicheskaya gidrodinamika. Moscow, Fizmatgiz, 1959, 669 p. (rus)

5. **Braginskii L.N., Barabash V.M., Begachev V.I.** Peremeshivanie v zhidkikh sredakh. Fizicheskie osnovy i metody rascheta. Leningrad, Khimiya, 1984, 336 p. (rus)

6. **Kolmogorov A.N.** Rasseianie energii pri lokal'noi izotropnoi turbulentnosti. Proceedings of the USSR Academy of Sciences, 1941, Vol. 32, № 1, pp. 19–21. (rus)

7. **Obukhov A.M.** O raspredelenii energii v spektre turbulentnogo potoka. Proceedings of the USSR Academy of Sciences, 1941, Vol. 32, № 1, pp. 22–24. (rus)

8. **Bradshaw P.** Vvedenie v turbulentnost' i ee izmerenie. Moscow, Mir, 1974, 277 p. (rus)

9. **Himmelblau, D.** Analiz protsessov statisticheskimi metodami. Moscow, Mir, 1973, 957 p. (rus)

10. **Ganin P.G., Schmidt A.A.** Veroyatnost' drobleniia kapel' v iadre turbulentnogo potoka zhidkosti za vremia prebyvaniia v rabochikh zonakh apparata s peremeshivaniem. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2008, № 6, pp. 113–120. (rus)

11. **Sprow S.B.** Distribution of drop size produced in turbulent liquid – liquid dispersion. *Chem. Eng. Sci.*, 1967, Vol. 22, pp. 435–439.

12. **Ganin P.G.** Teoreticheskaya otsenka ustoiichivosti adsorbtsionnogo vzaimodeistviia chastits tverdoi i zhidkoi dispersnykh faz v apparate s peremeshivaniem. *Sorbtsionnye i khromatograficheskie protsessy*, 2006, Vol. 6, № 3, pp. 486–497. (rus)

13. **Baron N.M., Ponomareva A.M., Ravdel' A.A. et al.** Kratkii spravochnik fiziko-khimicheskikh velichin. Leningrad, Khimiya, 1983, 232 p. (rus)

14. **Kafarov V.V.** Modelirovanie biokhimicheskikh reaktorov. Moscow, Lesnaia prom-st', 1979, 344 p. (rus)

15. **Friedrichsberg D.A.** Kurs kolloidnoi khimii. Leningrad, Khimiya, 1984, 368 p. (rus)

16. **Kafarov V.V.** Osnovy massoperedachi. Moscow, Vysshaia shkola, 1979, 439 p. (rus)

ГАНИН Павел Георгиевич — кандидат технических наук, доцент кафедры медицинской биотехнологии Санкт-Петербургского государственного политехнического университета; старший научный сотрудник кафедры микробиологии Санкт-Петербургской государственной химико-фармацевтической академии.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
ganin-pavel@rambler.ru

ШМИДТ Александр Александрович — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры гидроаэродинамики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета, заведующий сектором числового моделирования Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
alexander.schidt@mail.ioffe.ru

УДК 530.145

А.Л. Санин, Е.А. Семёнов

**КВАНТОВЫЕ ДВУМЕРНЫЕ ОСЦИЛЛЯТОРЫ
С ПОТЕНЦИАЛОМ СВЯЗИ ПАЛЛЕНА – ЭДМОНДСА**

A.L. Sanin, E.A. Semyonov

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia

**QUANTUM TWO-DIMENSIONAL OSCILLATORS
WITH PALLÉN – EDMONDS COUPLING POTENTIAL**

Проведено численное интегрирование нестационарного двумерного уравнения Шрёдингера. В рамках анализа квантовых волновых пакетов, динамических средних, частотных спектров, произведений неопределенностей и автокорреляторов изучены динамические закономерности в системе двух квантовых осцилляторов с потенциалом связи Паллена – Эдмондса. В режиме слабой связи генерируются многочастотные колебания, число спектральных компонент возрастает с увеличением параметра связи.

СВЯЗАННЫЕ ОСЦИЛЛЯТОРЫ, ПОТЕНЦИАЛ ПАЛЛЕНА – ЭДМОНДСА, ЧАСТОТНЫЙ ОТКЛИК, ДВУМЕРНОЕ УРАВНЕНИЕ ШРЁДИНГЕРА.

The numerical integration of the non-stationary two-dimensional Schrodinger equation was carried out. In the context of quantum wave-packets, dynamical means, frequency spectra, uncertainty relations, autocorrelators there were studied the dynamical properties for two quantum oscillators coupled by the Pallen – Edmonds potential. In the regime of the weak coupling the many-frequency oscillations are generated, the spectral component number is increased at amplification of coupling.

COUPLED OSCILLATORS, PALLÉN – EDMONDS POTENTIAL, FREQUENCY RESPONSE, TWO-DIMENSIONAL SCHRÖDINGER EQUATION.

Квантовые осцилляторы с двумя степенями свободы и связью между ними являются предметом многих исследований. В настоящее время достаточно хорошо изучены квантовые гармонические осцилляторы с потенциалом связи Паллена – Эдмондса [1]. Указанный потенциал представляет собой произведение квадратов координат с постоянным множителем, который характеризует величину взаимодействия осцилляторов и называется параметром связи. В зависимости от величины коэффициента

возможны различные режимы колебаний, которые могут быть обусловлены поведением классического аналога такого осциллятора. В этом случае говорят о квантово-классическом соответствии.

Еще больший интерес для развития теории квантовых информационных процессов представляют исследования связанных ангармонических осцилляторов. Поэтому изучение динамических закономерностей в таких системах является насущной задачей. Простым примером ангармонических



осцилляторов может служить осциллятор с единственным потенциальным слагаемым, пропорциональным четвертой степени координаты. В классическом пределе ему соответствует нелинейный одномерный осциллятор. В этом случае решения для одномерного ангармонического осциллятора описываются эллиптическими функциями, а частота нелинейных колебаний является функцией от энергии системы, а именно — пропорциональна корню четвертой степени от ее величины.

Энергетический спектр квантового одномерного осциллятора с потенциалом четвертой степени обсуждается в ряде работ: например, в статье [2] он является неэквидистантным и характеризуется парами близколежащих уровней с малыми зазорами между ними. Как и для квантового гармонического осциллятора, рассматриваемая система является неограниченной по координате. В этой же статье вводится дополнительное квадратичное слагаемое и обсуждаются изменения в спектре энергий теперь уже двухъямного осциллятора.

Более ранние исследования осцилляторов с двумя степенями свободы и потенциалами четвертой степени, включая потенциал Паллена — Эдмондса, были выполнены в классическом, полуклассическом и квантовом описаниях. Отметим некоторые из работ, в частности [3, 4]. Здесь особое внимание обращается на динамику квантовых систем, классический аналог которых находится в хаотическом состоянии. В последние годы в этом направлении выполнены работы [5 — 8]. В одной из них исследуются два квантовых ангармонических осциллятора с потенциалами четвертой степени, коэффициенты при которой равны трем и единице, а параметр потенциала связи Паллена — Эдмондса варьируется в определенном диапазоне [8]. Для классического аналога данной системы изучен динамический хаос и его возможное влияние на генерацию квантового хаоса в соответствующей квантовой системе. Этой проблеме уделяется достаточно много внимания.

Вместе с тем существует другая, не менее важная, проблема квантовых связанных осцилляторов с широкополосным спек-

тром, классические аналоги которых характеризуются регулярным поведением, то есть без динамического хаоса. Этой проблеме посвящена данная статья. В ней обсуждается влияние параметра связи в потенциале Паллена — Эдмондса на эволюцию частотных спектров, а также показано, что с увеличением параметра связи возрастает число спектральных компонент, происходит смещение спектра в сторону более высоких частот и перераспределение энергии по спектру. Настоящее исследование представляет не только общетеоретический интерес, но и может быть использовано для описания мезоскопических систем и других квантовых объектов. Данная статья продолжает серию наших предыдущих работ [9 — 14] и составляет часть в изучении более сложных и конкретных моделей.

Основные уравнения и допущения

Уравнение Шрёдингера в безразмерной форме имеет вид

$$i \frac{\partial \psi}{\partial t} = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \psi + U_{\Sigma} \psi; \quad (1)$$

оно определяет временную эволюцию волновой функции

$$\psi = \psi(x, y, t),$$

где x, y, t — координаты и время, соответственно.

Уравнение (1) является инвариантным относительно выбора единиц измерения: может быть выбрана боровская длина, но с учетом эффективной массы электрона. Проведенное исследование рассматривается как модель, позволяющая исследовать общие квантовые волновые закономерности, которые могут наблюдаться в разных квантовых системах. Полный потенциал U_{Σ} определяется как сумма

$$U_{\Sigma} = U(x, y) + U_c(x, y), \quad (2)$$

где для слагаемых потенциалов вводятся выражения

$$\begin{aligned} U(x, y) &= a_x x^4 + a_y y^4, \\ U_c(x, y) &= \gamma x^2 y^2. \end{aligned} \quad (3)$$

Коэффициенты a_x, a_y и параметр γ являются варьируемыми. Ниже мы обсудим

задачу для $a_x = a_y$; потенциал Паллена — Эдмондса U_c будет рассматриваться при малых значениях параметра γ . Исследуемая квантовая система находится между стенками бесконечной потенциальной ямы и является пространственно-ограниченной. Координаты стенок ямы $\pm x_\alpha, \pm y_\alpha$, причем $x_\alpha = y_\alpha$. Потенциалы U, U_c в этих точках конечны. Влияние стенок на колебания зависит от размеров системы x_α, y_α и энергии квантового волнового пакета в начальный момент времени. Данными параметрами в ходе вычислительных экспериментов можно управлять. В целом мы имеем модель плоской ячейки. Если $U_c = 0$, то динамическая система может рассматриваться как состоящая из двух независимых осцилляторов. Если $U_c \neq 0$, то система становится связанной.

Граничные условия на внешних стенках квантовой системы и начальная волновая функция определяются как

$$\begin{aligned} \psi(\pm x_\alpha, \pm y_\alpha, t) &= 0, \\ \psi(x, y, t = 0) &= \psi_0(x, y). \end{aligned} \quad (4)$$

Начальное условие задается гауссовым волновым пакетом:

$$\psi_0(x, y) = C \exp \left[-\alpha_x (x - x_0)^2 - \alpha_y (y - y_0)^2 \right], \quad (5)$$

где x_0, y_0 — средние значения координат пакета в начальный момент времени. Постоянная C определяется из условия нормировки.

Динамические свойства квантовых волновых пакетов изучались при помощи вычислений средних значений координат $\langle x \rangle, \langle y \rangle$, средних скоростей $\langle V_x \rangle, \langle V_y \rangle$, а также нормальных отклонений $\langle \Delta x \rangle, \langle \Delta y \rangle, \langle \Delta V_x \rangle, \langle \Delta V_y \rangle$. Все эти величины определяются по стандартным формулам квантовой механики. Произведения $g_x = \Delta x \Delta V_x, g_y = \Delta y \Delta V_y$ удовлетворяют соотношениям неопределенностей:

$$g_x \geq \frac{1}{2}, \quad g_y \geq \frac{1}{2}. \quad (6)$$

Знак равенства описывает минимизированное значение произведения неопределенностей. Отклонение от этого значения соответствует росту квантовых флуктуаций.

Временные реализации $\langle x \rangle, \langle y \rangle$ будут обсуждаться в рамках Фурье-преобразований. Соответствующие амплитуды Фурье были обозначены как $F_{(x)}(\Omega), F_{(y)}(\Omega)$, а величина Ω есть частота. В качестве дополнительного средства в изучении волноупакованной динамики использовался автокоррелятор, вычисленный по формуле

$$R = \left| \int_{-x_\alpha}^{x_\alpha} dx \int_{-y_\alpha}^{y_\alpha} dy \psi^*(x, y, t) \psi_0(x, y) \right|^2. \quad (7)$$

Численное интегрирование уравнения Шрёдингера (1) было проведено в замкнутой области

$$\begin{aligned} \bar{R} &= \{(x, y, t) : -7 \leq x \leq 7, \\ &-7 \leq y \leq 7, 0 \leq t \leq 1500\}. \end{aligned}$$

В некоторых вариантах расчета длина временного промежутка $T > 1500$, и таким образом минимальная наблюдаемая частота $\Omega_{\min} = 2\pi / T$ становилась меньше и увеличивалось разрешение по частотам Ω в спектре.

Временная эволюция и частотный отклик при малой связи

В отличие от систем, изученных в статьях [3, 5], мы рассматриваем квантовую систему с одинаковыми параметрами $a_x = a_y = 0,002$ и малым параметром связи $\gamma \in [0; 0,05]$.

Начальный гауссов пакет характеризуется параметрами $\alpha_x = \alpha_y = 0,5$, а величины отклонений x_0, y_0 удовлетворяют равенству $x_0 = y_0 = 0,5$. При этом значения отклонения много меньше полуширины ямы, ко-

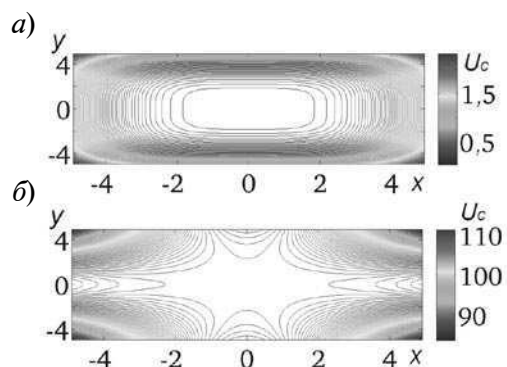


Рис. 1. Карты линий равного потенциала Паллена — Эдмондса при разных значениях параметра связи γ : 0 (а) и 0,05 (б)

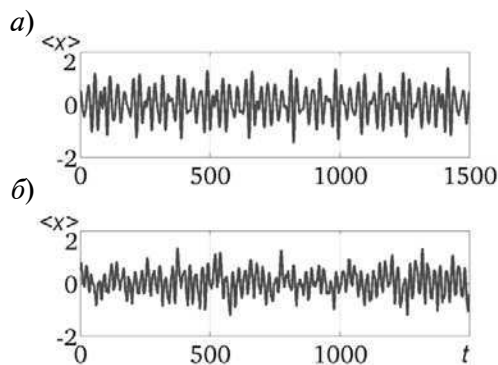


Рис. 2. Временные реализации величины $\langle x \rangle$ при разных значениях параметра связи γ : 0 (а) и 0,05 (б)

торая равна 7. Карты изолиний потенциала при разных значениях γ даны на рис. 1. При $\gamma = 0$ линии равного потенциала имеют простой рельеф. Расчеты режимов колебаний проводились при $\gamma = 0, 0,001, 0,005$ и $0,05$. При малом изменении величины γ рельеф деформируется слабо, но уже при $\gamma = 0,05$ отличия от рельефа при $\gamma = 0$ становятся визуально заметными.

Соответствующие этим картам временные реализации $\langle x \rangle$ даны на рис. 2. Аналогичные решения имеют место для зависимости $\langle y \rangle$ от времени, эволюционные картины $\langle x \rangle$ и $\langle y \rangle$ совпадают. Различие во временной эволюции волнового пакета при $\gamma = 0$ и $0,05$ удобно обсуждать на основании изменений, происходящих с величинами g_x и частотными спектрами.

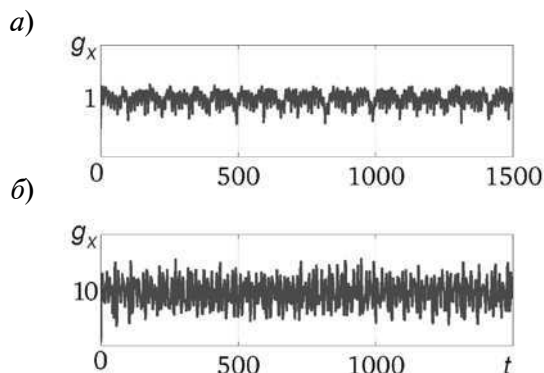


Рис. 3. Влияние параметра связи на произведение неопределенностей g_x : $\gamma = 0$ (а) и 0,05 (б)

В связи с тем, что все расчеты при заданных параметрах приводят к одинаковым результатам для обеих степеней свободы: $g_x = g_y$, $F_{\langle x \rangle}(\Omega) = F_{\langle y \rangle}(\Omega)$, на рисунках будут представлены только параметры, характеризующие колебания вдоль оси x .

При $\gamma = 0$ произведение неопределенностей g_x осциллирует относительно $g_x \approx 1$, при $\gamma = 0,001$ — относительно g_x , которое чуть выше $g_x \approx 1$. Однако при значении $\gamma = 0,005$ ситуация уже существенно меняется: значение, вокруг которого осциллирует g_x , равно 2. Наконец, при $\gamma = 0,05$ произведение g_x осциллирует относительно значения $g_x \approx 10$ (рис. 3). Если ввести фазовый объем, равный $g_x \times g_y = g_x^2$ и характеризующий меру флуктуаций, то он будет составлять значение около 100. Такую характеристику часто

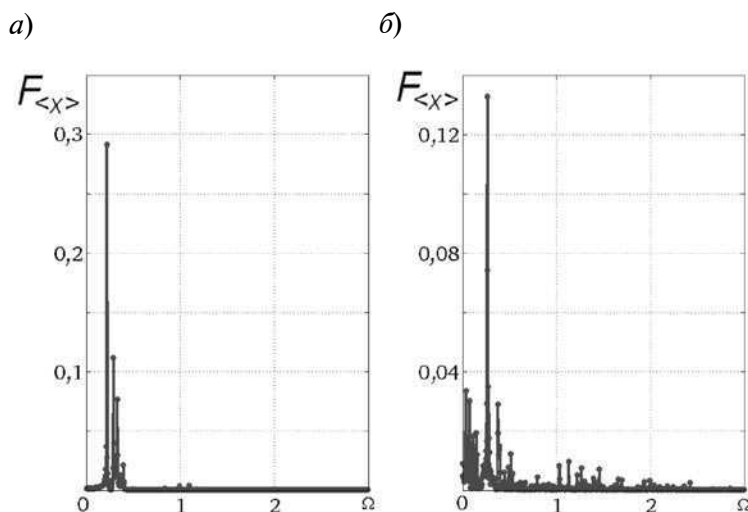


Рис. 4. Частотные спектры при разных значениях параметра связи γ : 0 (а) и 0,05 (б)

Характеристика наиболее интенсивных компонент в частотном спектре при разных значениях параметра связи

γ	Ω	$F_{<x>}(\Omega)$
0	0,2178	0,2912
	0,2898	0,1117
0,001	0,2094	0,2010
	0,1968	0,0661
0,005	0,1424	0,1777
	0,2053	0,1555
0,05	0,2681	0,1328
	0,2765	0,0350

вводят для анализа динамических процессов. Еще более драматические изменения происходят с частотными спектрами колебаний при увеличении параметра связи γ . На рис. 4 представлены частотные спектры для разных значений параметра связи.

С увеличением значения параметра γ , даже при его малом изменении, например при $\gamma = 0,005$, происходят заметные изменения в частотных спектрах. Прежде всего уменьшается амплитуда наиболее интенсивной Фурье-компоненты, и постепенно появляются новые компоненты. С последующим увеличением γ число новых компонент быстро возрастает и происходит перераспределение энергии по спектру. В отдельных случаях мы увеличивали время расчетов, с тем, чтобы уменьшить значение $\Omega_{\min}$ и учесть соседние дискретные компоненты $F_{<x>}(\Omega)$ с $\Delta\Omega > \Omega_{\min}$. Подсчет спектральных компонент при одном и том же временном промежутке T , но при разных значениях γ был выполнен с $\Delta\Omega > \Omega_{\min}$. Число спектральных компонент, выбранных так, чтобы их амплитуда была выше некоторой пороговой величины, возрастает с увеличением значения γ . Представление об изменениях в полученных спектрах можно получить на примере двух наиболее интенсивных компонент (см. таблицу).

Существенным является возрастание числа спектральных компонент на более высоких частотах (при $\Omega > 1$).

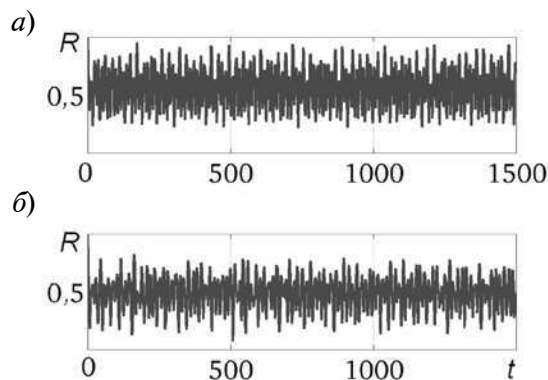


Рис. 5. Временные зависимости автокоррелятора при разных значениях параметра связи γ : 0 (а) и 0,05 (б)

Расчеты автокорреляторов при разных γ , которые представлены на рис. 5, также характеризуют многочастотные процессы, соответствующие дискретному спектру.

Для подтверждения синхронности колебаний по обеим координатам была рассчитана зависимость $\langle y \rangle = f(\langle x \rangle)$, которая, как оказалось, во всех случаях представляла собой отрезок прямой, лежащей на биссектрисе прямого угла; это свидетельствовало о том, что колебания являются совпадающими.

Итак, в отличие от работ, цитируемых нами выше, где основное внимание уделялось энергетическим спектрам стационарных задач, статистике междуровневых расстояний и их влиянию на возникновение хаоса, мы делаем акцент на изучение частотных спектров динамических задач, которые обусловлены переходами между соседними уровнями. При малом параметре, характеризующем слабую связь, и отсутствии хаоса в классических двойниках, в квантовых системах реализуется многочастотные широкополосные режимы колебаний.

Эти режимы требуют дальнейших исчерпывающих исследований. Настоящую статью следует рассматривать как дополнение к существующим исследованиям, основанную на других подходах и методах.



СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Елютин, П.В.** Проблемы квантового хаоса [Текст] / П.В. Елютин // Успехи физических наук. — 1988. — Т. 155. — № 3. — С. 398–437.
2. **Novaes, M.** Generalized coherent states for the double-well potential [Text] / M. Novaes, M. de Angular, J. Harrison // *J. Phys. A: Math. Gen.* — 2003. — Vol. 36. — P. 5773 (14 p).
3. **Atkins, K.M.** Quantum-classical correspondence and the transition to chaos in coupled quartic oscillators [Text] / K.M. Atkins, G.S. Ezra // *Phys. Rev. E.* — 1995. — Vol. 51. — № 3. — P. 1822 (16 p).
4. **Pathak, A.** Classical and quantum oscillators of quartic anharmonic second-order solution [Text] / A. Pathak, S. Mandal // *Phys. Lett. A.* — 2001. — Vol. 286. — P. 261 (16 p).
5. **Chung, N.N.** Energy eigenvalues and squeezing properties of general systems of coupled quantum anharmonic oscillators [Text] / N.N. Chung, L.Y. Chew // *Phys. Rev. A.* — 2007. — Vol. 76. — P. 032113 (9 p).
6. **Chung, N.N.** Two-step approach to the dynamics of coupled anharmonic oscillators [Text] / N.N. Chung, L.Y. Chew // *Phys. Rev. A.* — 2009. — Vol. 80. — P. 02103 (10 p).
7. **Joshi, C.** Quantum entanglement of anharmonic oscillators [Электронный ресурс] / C. Joshi, M. Jonson, E. Anderson, P. Oberg // arXiv:1105.2256v2 [quantum-ph] 13 Mar 2012.
8. **Chew, L.Y.** Quantum-classical correspondence through entanglement dynamics [Text] / L.Y. Chew, N.N. Chung // *Chaotic Modeling and Simulations.* — 2012. — Vol. 3. — P. 451 (9 p).
9. **Санин, А.Л.** Динамика квантовых волновых пакетов в системе с потенциальными ямами и барьером [Текст] / А.Л. Санин, А.Т. Багманов, А.А. Смирновский // Научно-технические ведомости Санкт-Петербургского государственного политехнического университета. Физико-математические науки. — 2006. — № 6(1). — С. 124–139.
10. **Санин, А.Л.** Свободные и связанные колебания электрона в двумерной квантовой системе с распределенным потенциалом и лазерным импульсом [Текст] / А.Л. Санин, Е.А. Семенов // Научно-технические ведомости Санкт-Петербургского государственного политехнического университета. Физико-математические науки. — 2010. — № 3(104). — С. 156–163.
11. **Санин, А.Л.** Свободные и связанные квантовые осцилляторы Дуффинга, влияние шума [Текст] / А.Л. Санин, Е.А. Семенов // Научно-технические ведомости Санкт-Петербургского государственного политехнического университета. Физико-математические науки. — 2012. — № 3 (153). — С. 171–181.
12. **Sanin, A.L.** Quantum Duffing oscillators [Text] / A.L. Sanin, E.A. Semyonov // *Nonlinear phenomena in complex systems.* — 2012. — Vol. 15. — P. 274 (9 p).
13. **Санин, А.Л.** Квантовые связанные осцилляторы в двумерной системе с полиномиальным потенциалом [Текст] / А.Л. Санин, Е.А. Семенов // Электромагнитные волны и электронные системы. — 2012. — Т. 17. — С. 8–13.
14. **Sanin, A.L.** Quantum coupled oscillators in two-dimensional systems [Text] / A.L. Sanin, E.A. Semyonov // *Optical memory and neural networks.* — 2013. — Vol. 22. — Iss. 1. — P. 28 (9 p.).

REFERENCES

1. **Eliutin P.V.** Problemy kvantovogo khaosa. *Physics-Uspekhi*, 1988, Vol. 155, № 3, pp. 398–437. (rus)
2. **Novaes M., de Angular M., Harrison J.** Generalized coherent states for the double-well potential. *J. Phys. A: Math. Gen.*, 2003, Vol. 36, p. 5773 (14 p).
3. **Atkins K.M., Ezra G.S.** Quantum-classical correspondence and the transition to chaos in coupled quartic oscillators. *Phys. Rev. E*, 1995, Vol. 51, № 3, p. 1822 (16 p).
4. **Pathak A., Mandal S.** Classical and quantum oscillators of quartic anharmonic second-order solution. *Phys. Lett. A*, 2001, Vol. 286, p. 261 (16 p).
5. **Chung N.N., Chew L.Y.** Energy eigenvalues and squeezing properties of general systems of coupled quantum anharmonic oscillators. *Phys. Rev. A*, 2007, Vol. 76, p. 032113 (9 p).
6. **Chung N.N., Chew L.Y.** Two-step approach to the dynamics of coupled anharmonic oscillators. *Phys. Rev. A*, 2009, Vol. 80, p. 02103 (10 p).
7. **Joshi C., Jonson M., Anderson E., Oberg P.** Quantum entanglement of anharmonic oscillators. Available at: arXiv:1105.2256v2 [quantum-ph].
8. **Chew L.Y., Chung N.N.** Quantum-classical correspondence through entanglement dynamics. *Chaotic Modeling and Simulations*, 2012, Vol. 3, p. 451 (9 p).
9. **Sanin A.L., Bagmanov A.T., Smirnovskii A.A.** Dinamika kvantovykh volnovykh paketov v sisteme s potentsial'nymi iami i bar'ером. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal*, 2006, No. 6(1), pp. 124–139. (rus)
10. **Sanin A.L., Semenov E.A.** Free and coupled oscillations of electron in 2D quantum system in distributed potential and laser impulse. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2010, № 3(104), pp. 156–163. (rus)

11. Sanin A.L., Semenov E.A. Quantum Duffing oscillators: free and coupled, noise action. *St. Petersburg State Polytechnical University Journal: Physics and mathematics*, 2012, № 3(153), pp. 171–181. (rus)

12. Sanin A.L., Semenov E.A. Quantum Duffing oscillators. *Nonlinear phenomena in complex systems*, 2012, Vol. 15, p. 274 (9 p.).

13. Sanin A.L., Semenov E.A. Kvantovye svyazannye ostsillatory v dvumernoi sisteme s polinomial'nym potentsialom. *Elektromagnitnye volny i elektronnye sistemy*, 2012, Vol. 17, pp. 8–13. (rus)

14. Sanin A.L., Semenov E.A. Quantum coupled oscillators in two-dimensional systems. *Optical memory and neural networks*, 2013, Vol. 22, Iss. 1, p. 28 (9 p.).

САНИН Андрей Леонардович — доктор физико-математических наук, профессор кафедры теоретической физики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
andreylsanin@yandex.ru

СЕМЁНОВ Евгений Александрович — аспирант кафедры теоретической физики Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
seaman2003@tut.by

УДК 523.985.3

Ю.Е. Чариков, В.И. Глобина, Е.М. Склярова

**СПЕКТРЫ ВРЕМЕННЫХ ЗАДЕРЖЕК ЖЕСТКОГО
РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ СОЛНЕЧНЫХ ВСПЫШЕК
ПО ДАННЫМ СПЕКТРОМЕТРА BATSE**

Yu.E. Charikov^{1,2}, V.I. Globina¹, E.M. Skliarova²

¹ St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia.

² Ioffe Physical Technical Institute of Russian Academy of Sciences,
26 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, 194021, Russia.

**HARD X-RAY TIME DELAY SPECTRA OF SOLAR FLARES:
BATSE SPECTROMETER DATA**

Рассмотрены временные задержки импульсов рентгеновского излучения в разных энергетических каналах в диапазоне 20 – 200 кэВ, зарегистрированного спектрометром BATSE во время полета космической станции CGRO. Для получения временных задержек вычисляются попарные корреляционные функции для всех рядов со значимыми скоростями счета. После этого строится спектр задержек от энергии рентгеновских квантов для различных фаз вспышек. На начальной фазе вспышек спектр задержек монотонно возрастает с ростом энергии. В максимуме излучения характер спектра меняется для разных вспышек: от U-образного до монотонно убывающего. На фазе спада скорости счета спектр задержек скорее повторяет спектр в максимуме. Проведено сравнение полученных спектров задержек с задержками, следующими из моделей распространения ускоренных электронов.

СОЛНЦЕ, ВСПЫШКИ, ЖЕСТКОЕ РЕНТГЕНОВСКОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ, ВРЕМЕННЫЕ ЗАДЕРЖКИ, СПЕКТРОМЕТР BATSE.

A time delays of X-rays in the energy range of 20 – 200 keV registered by BATSE spectrometer during a space flight of CGRO have been considered. Pair wise correlation functions for all time series with a significant count rates were computed. Delay spectra are based via X-ray energy for different phases of flares. In the initial phase of the burst the delays increase monotonically with increasing energy. At the peak of the radiation pattern of the spectrum of different bursts is changing: from U-shaped to monotonically decreasing. On the decay phase of the count rate the delay spectra rather repeat the same of the maximum. A comparison of the delay spectra to the delays, following the models of the transport of the accelerated electrons were carried out.

SUN, FLARES, HARD X-RAY, TIME DELAYS, BATSE SPECTROMETER.

По современным представлениям, во время солнечных вспышек ускорение электронов происходит в короне, в то время как жесткое рентгеновское излучение (ЖРИ)

генерируется в хромосфере (см., например, работу [1]). Изучение временных задержек указанного рентгеновского излучения солнечных вспышек служит дополнительным

каналом информации о процессах распространения ускоренных электронов и механизме излучения рентгеновских квантов. Так, например, в модели свободного пролета электронов от области ускорения до области источника ЖРИ ожидаются монотонные временные задержки квантов меньших энергий по отношению к высокоэнергичному излучению [2, 3]. Обратная зависимость задержек от энергии квантов ожидается в модели ускоренных электронов, захваченных в магнитную ловушку вспышечной петли, с последующим их высыпанием в область плотной плазмы (толстая мишень) [4]. В работах [2, 3] анализировалось 5430 рентгеновских всплесков во время 640 солнечных вспышек, зарегистрированных спектрометром BATSE с временным разрешением 64 мс. Главной задачей указанных работ было обнаружение временных задержек квантов меньших энергий по отношению к излучению квантов более высоких энергий. Другими словами, проводились попытки обнаружить свободный пролет ускоренных электронов от области ускорения до области тормозного излучения. В результате были получены времена задержек в широком диапазоне значений: от нескольких миллисекунд до секунд. Используя миллисекундные задержки, авторы работ [2, 3] построили модель распространения электронов с определением параметров магнитной петли и плазмы в ней. На наш взгляд, вызывает сомнение точность, с которой авторы определяли величины задержек в несколько миллисекунд. Согласно проведенной нами обработке данных, аппроксимации корреляционной функции (точнее ее максимума) как полиномами второй и четвертой степеней, подобно сделанной в работах [2, 3], так и кривой Гаусса, приводят уже к расхождению в десятки миллисекунд. В связи с этим, задержки в несколько миллисекунд определены с ошибкой, которая имеет порядок, также измеряемый в миллисекундах. Авторы работы [4] строят спектр задержек для 78 вспышек, одновременно наблюдавшихся на космических аппаратах CGRO и Yohkoh, используя 16 энергетических каналов. Для сглаженных потоков ЖРИ в этих всплесках обнаружены, согласно указанной публикации, систематические задержки

длительностью 1 – 10 с, причем знаки этих задержек были отрицательными, то есть высокоэнергичные фотоны регистрировались ранее, чем низкоэнергичные. Следует отметить, что вид спектра задержек не во всех исследованных вспышках был спадающим с ростом энергии. В ряде всплесков отмечалась и обратная зависимость, но в работе [4] она не принималась во внимание.

Здесь мы хотим особо подчеркнуть, что для исследования временных задержек интереснее получить их спектры на разных фазах развития вспышки, поскольку в процессе развития самой вспышки меняется как темп ускорения заряженных частиц, так и условия их распространения в плазме вспышечной петли.

Поэтому основная цель статьи – построение спектра временных задержек ЖРИ на разных стадиях эволюции, его анализ и сравнение с модельными спектрами задержек, полученными в простых предположениях о движении ускоренных электронов вдоль вспышечной петли.

Методика обработки временных рядов жесткого рентгеновского излучения солнечных вспышек

Спектрометр BATSE регистрировал излучение в режимах умеренного (16 каналов) и высокого (100 каналов) энергетического разрешения. В первом случае временное разрешение меняется от 16 до 2048 мс (в зависимости от величины скорости счета и режима накопления данных). Банк данных BATSE содержит ЖРИ солнечных вспышек в период с апреля 1991 по май 2000 года [5]. Определение времени задержки между двумя сигналами из различных энергетических каналов проводилось с помощью построения взаимной корреляционной функции (далее – ВКФ). Эта функция описывает степень сходства формы двух сигналов и их расположение друг относительно друга по временной координате (независимой переменной). Для двух дискретных сигналов ВКФ определяется следующим образом:

$$R_{xy}(m) = \begin{cases} \sum_{n=1}^{N-m} x_{n+m} y_n, & m \geq 0; \\ R_{yx}(-m), & m < 0, \end{cases}$$



где N — общее число точек двух последовательностей, m — временной сдвиг между ними.

Для двух сигналов произвольной формы максимум ВКФ соответствует тому значению сдвига m , при котором площадь перекрытия сигналов максимальна. В частном случае двух сигналов симметричной формы максимум ВКФ соответствует разности времен максимумов этих сигналов. Таким образом, время задержки между двумя сигналами определялось по максимальному значению данной функции.

Первая задача, которую было необходимо решить в процессе обработки, связана с отбором вспышек для последующего анализа. Для начала мы ограничили себя отбором событий с наиболее простым временным профилем в виде единичного рентгеновского всплеска короткой длительности. При этом для построения спектра задержек данный всплеск должен был регистрироваться не менее чем в пяти энергетических каналах с энергией от 24 кэВ до примерно 200 кэВ. Например, для вспышки 2704 из каталога BATSE предельным каналом являлся восьмой (диапазон энергий 125,5 — 166,5 кэВ). В среднем, по всем исследованным вспышкам последним для корреляции каналом является шестой (75,7 — 100,6 кэВ, см. таблицу).

Следующим этапом обработки сигналов являлось выделение фона в энергетических каналах; в каждом из них уровень фона зависит от энергии квантов. Поскольку определение времени задержки между сигналами различных каналов выполняется по максимуму ВКФ, очевидно, что наличие фона в каждом канале влияет на величину сдвига, которой соответствует максимальная площадь перекрытия сигналов. Таким образом, вычитание фона из сигнала есть необходимая процедура обработки. Как правило, в данных, полученных с помощью спектрометра BATSE, зарегистрированы сигналы как до начала вспышки, так и после нее. Определение фона в каждом энергетическом канале проводилось посредством аппроксимации экспериментальных данных линейной функцией как на стадии до, так и после вспышечного всплеска. Далее ап-

роксимированный фон вычитался из данных, полученных на каждом канале. Затем проводилось построение ВКФ для всех пар временных рядов из рассматриваемых энергетических диапазонов. Ввиду сравнительно небольшого значения ожидаемой величины задержки между сигналами (меньше 2048 мс), проводилась интерполяция трех точек ВКФ вблизи ее максимума полиномом второй (четвертой) степени.

Результаты анализа временных задержек

Анализ временных задержек проводился для вспышек, представленных в таблице. Поскольку их спектры аналогичны, мы рассмотрим только некоторые из них.

Вспышка 284 по каталогу спектрометра BATSE. На рис. 1 приведены временные профили вспышки 284. Она произошла 6 июня 1991 г., начало зафиксировано в 05:06:04 UT, ее рентгеновский класс — M1.1. Профили вспышки в разных энергетических каналах представляют собой одиночный всплеск общей длительностью 15 с (см. рис. 1). Число энергетических каналов, в которых анализировалась скорость счета, равно пяти; диапазон энергий — (24,1 — 100,6) кэВ.

Из данных рис. 1 следует, что в данном событии фоновое излучение измерялось длительное время до и после самого всплеска. Поэтому задача определения фона могла быть решена аккуратно. После вычитания фона вычислялась парная ВКФ для всех пяти каналов, определялись временные задержки и строился их спектр по отношению к самому «быстрому» энергетиче-

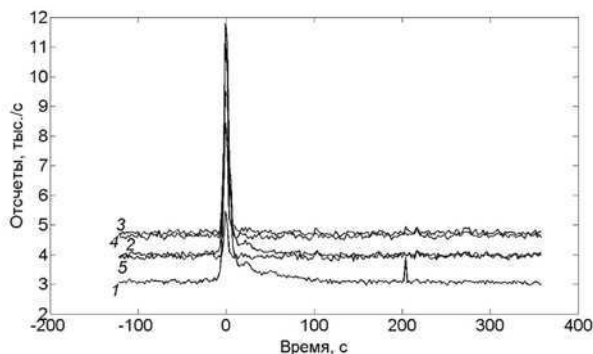


Рис. 1. Временные профили солнечной вспышки 284 (см. таблицу) для пяти энергетических каналов, кэВ: 24,1 — 33,1 (1), 33,1 — 42,8 (2), 42,8 — 57,6 (3), 57,6 — 75,7 (4), 75,7 — 100,6 (5)

Основные характеристики и результаты анализа
рассмотренных солнечных вспышек из каталога BATSE

Данные вспышек по каталогу						Результаты анализа задержек		
Номер	Дата	Начальный момент, UT	Длительность, с	Класс GOES	Диапазон энергий, кэВ	Число каналов	Максимальная длительность, мс	Вид спектра
151	06.05.91	16:11:30	15	C1.8	24 – 76	4	155	Сп
284	06.06.91	05:06:04	15	M1.1	24 – 101	5	523	Сп
598	31.07.91	10:14:42	20	C6.1	24 – 101	5	1200	Сп
874	07.10.91	07:29:11	20	C	24 – 101	5	392	U
880	08.10.91	08:34:34	20	C3.2	24 – 101	5	237	Сп
903	15.10.91	06:12:51	30	C6.8	24 – 101	5	713	Сп
1296	13.01.92	17:27:28	> 300	M2.0	24 – 101	5	321	U
2024	30.10.92	13:32:52	30	—	24 – 101	5	148	U
2028	30.10.92	22:53:31	30	X1.2	24 – 101	5	1415	Сп
2091	09.12.92	17:24:18	15	—	24 – 101	5	345	Сп
2704	23.12.93	05:28:30	25	C4.4	24 – 166	7	642	Сп–Р

Обозначения вида спектров задержек: Сп – спадающий, U – U-образный, Сп – Р – состоящий из спадающей и растущей ветвей

скому каналу. На рис. 2 показаны спектры временных задержек для всего всплеска и для разных фаз развития вспышки: роста, максимума и спада ЖРИ.

Отметим, что спектр задержек на стадии увеличения скорости счета монотонно возрастает с увеличением энергии, в то время как на последующих стадиях спектр задержек монотонно спадает. На стадии роста закон зависимости длительности задержек от величины энергии не является строго степенным. Однако аппроксимация данной

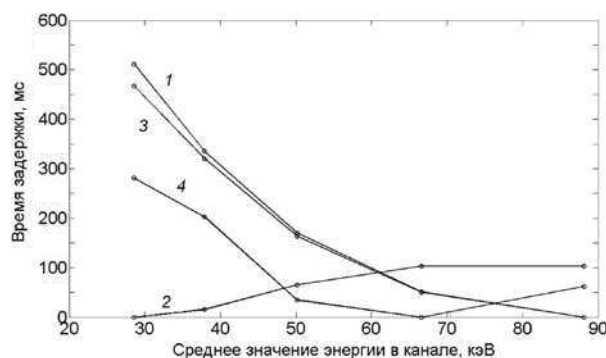


Рис. 2. Спектры задержек всплеска 284 (см. таблицу) для всего профиля (1), а также для его различных стадий: роста (2), пика (3) и спада (4) жесткого рентгеновского излучения (см. рис. 1)

кривой степенным законом соответствует показателю степени $\alpha = +1,52$. Во все последующие моменты времени спектр задержек монотонно спадает вплоть до самых высоких энергий (см. рис. 2, кривые 1, 3 и 4). Следует отметить небольшую особенность в спектре задержек на стадии спада: монотонное уменьшение времени задержек происходит до энергий 67 кэВ с последующим ростом на больших значениях энергии. Закон изменения задержек от энергии как на стадии пика, так и для всей вспышки в целом аппроксимируется степенной функцией с показателем степени $\alpha = -2$.

Величина задержек также меняется на разных фазах всплеска. Максимальные значения около 500 мс имеют место и для всего всплеска, и для стадии пика, несколько уменьшаясь на стадии роста (100 мс).

Вспышка 2028 по каталогу BATSE. Она произошла 30 октября 1992 года, ее начало зафиксировано в 22:53:31 UT, рентгеновский класс – X1.2. Временные профили вспышки представлены на рис. 3.

Профили ЖРИ при разных значениях энергии являются одиночными всплесками. Длительность всплесков разных энергий составляет в среднем 30 с. Рентгеновский фон, как и в предыдущем случае, аккуратно

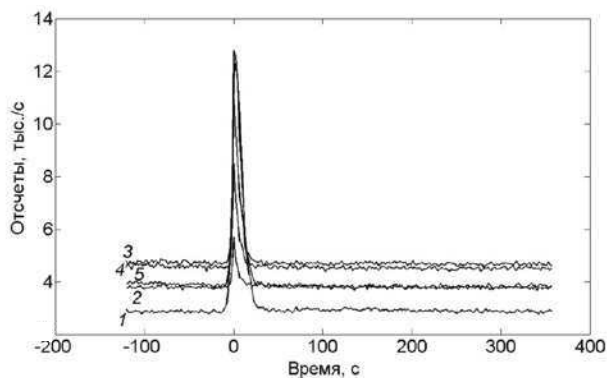


Рис. 3. Временные профили солнечной вспышки 2028 (см. таблицу) для пяти энергетических каналов (те же, что на рис. 1)

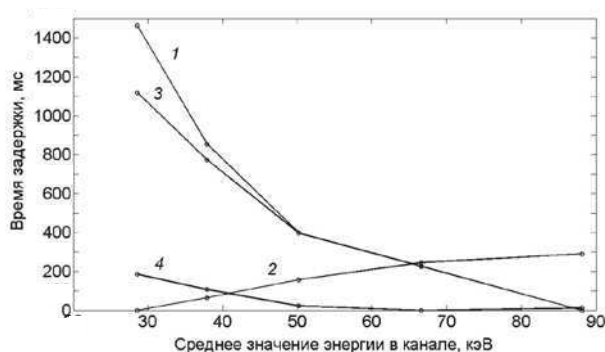


Рис. 4. Спектры задержек вспышки 2028 (см. таблицу) для всего профиля (1) и тех же стадий (2 – 4) жесткого рентгеновского излучения, что на рис. 2 (см. рис. 3)

вычисляется. Построение ВКФ и определение парных задержек позволяет построить спектр временных задержек для данного всплеска (рис. 4).

Первое, на что следует обратить внимание, — это существенно большая величина задержек в этом всплеске. Она достигает значений порядка 1,5 с для всего всплеска в целом. На отдельных стадиях эволюции всплеска также отметим возросшие значения задержек. Необходимо особо рассмотреть спектр задержек, его зависимость от энергии. Аппроксимация этого спектра степенной функцией для стадии роста дает значение показателя степени, равное $\alpha = +1,59$. Зависимость задержек от энергии и на стадии пика, и для всей вспышки в целом носит также степенной характер, но значения показателя степени — отрицательные и составляют $\alpha = -1,93$ и $-2,28$, соответственно.

Вспышка 2704 по каталогу BATSE. Иной характер спектра задержек получен во вспышке 2704. Вспышка произошла 23 декабря 1993 года, в 05:28:30 UT, рентгеновский класс — C4.4. Временные профили вспышки показаны на рис. 5. В данном событии анализировалось ЖРИ из семи энергетических каналов. Энергетический диапазон составлял (24,1 — 166,5) кэВ. Профили ЖРИ на разных энергиях также характеризуются одиночными всплесками. Общая длительность всплесков составляет около 25 с. Стадии фона до и после всплеска позволяют точно определить фон. Спектр задержек для данного всплеска приведен на рис. 6.

Отметим иной характер спектра задержек. На стадии роста спектр по-прежнему остается монотонно возрастающим с увеличением энергии (кривая 2). Максимальная задержка составляет около 100 мс для квантов с энергией 150 кэВ по отношению к ЖРИ с энергией 50 кэВ. На стадии пика ЖРИ (кривая 3) кривая спектра имеет U-образную форму, а излучение с энергиями до и выше 50 кэВ запаздывает. При этом ЖРИ с энергией 150 кэВ запаздывает по отношению к таковому с энергией 50 кэВ на 642 мс. Спектр задержек в данном всплеске характеризуется производными разных знаков. Аппроксимация степенным законом дает значение показателя степени $\alpha = +1,3$ на стадии роста вспышки. Для спектров задержек, соответствующих стадии пика и всей вспышки в целом, аппроксимация проводилась только для монотонно возрастающих участков ввиду малого коли-

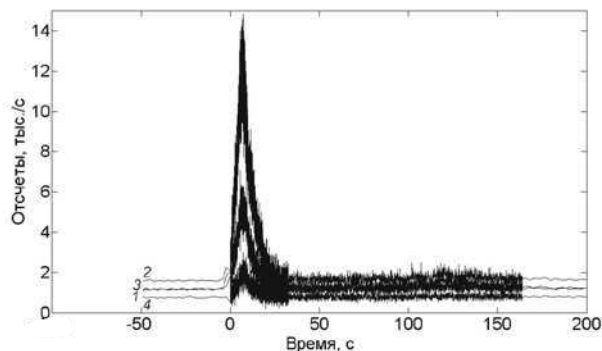


Рис. 5. Временные профили вспышки 2704 (см. таблицу) для четырех энергетических каналов, кэВ: 24,1 — 33,1 (1), 42,8 — 57,6 (2), 75,7 — 100,6 (3), 125,5 — 166,5 (4)

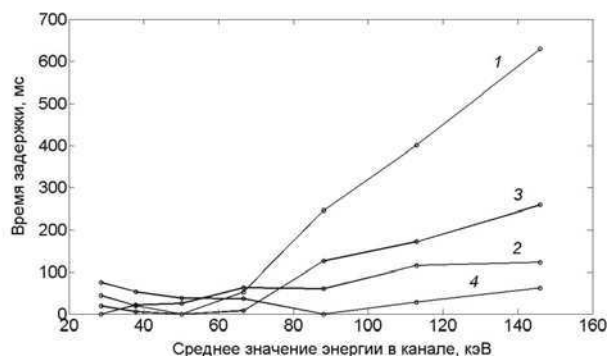


Рис. 6. Спектры задержек вспышка 2704 (см. таблицу) для всего профиля (1) и тех же стадий (2 – 4), что на рис. 2 и 4 (см. рис. 5)

чества точек. Значения показателя степени составили +2,18 (для стадии пика) и +2,29 (для всей вспышки). Зависимость задержек от величины энергии для стадии спада аппроксимировалась степенным законом на участке, соответствующем убыванию величины задержек с ростом энергии, и значение показателя степени составило $\alpha = -1,37$.

Обсуждение результатов

Рассмотрим возможные причины возникновения временных задержек жесткого рентгеновского излучения разных энергий. Очевидно, что эти задержки могут быть связаны с процессами ускорения, инжекции и распространения электронов, их излучением во вспышечной плазме. В настоящее время затруднительно ответить точно на вопрос о темпе набора энергии электронами в момент непосредственного ускорения. Остается также неясным вопрос о локализации области ускорения: согласно стандартной модели, ускорение происходит в короне единым образом. Однако в этой модели остается нерешенной проблема ускорения большого числа частиц до релятивистских скоростей. В короне их просто недостаточно. Поэтому предполагается существование второго этапа ускорения частиц: на МГД-волнах. При этом возникает естественный вопрос о темпе набора энергии заряженными частицами в рамках данной модели. Если предположить, что ускорение электронов происходит в продольном электрическом поле (без учета потерь энергии) с характерным масштабом L (размер магнитного «острова»), то время

набора энергии t^{acc} связано с кинетической энергией E соотношением

$$t^{\text{acc}} = (L/c)(\gamma^2 - 1)^{1/2}/(\gamma_{\text{max}} - 1),$$

где $\gamma = 1 + E/mc^2$ – Лоренц-фактор электрона.

Если сравнить времена ускорения электронов в продольном электрическом поле до энергий 20 и 100 кэВ, то получим отношение $t_{100}/t_{20} = 1,33$. Таким образом, задержка t_{100} в ускорении высокоэнергичных электронов может быть связана со временем t_{20} (ускорение до энергий 20 кэВ) соотношением

$$t_{100} = 0,33t_{20}.$$

Например, если $t_{20} = 100$ мс (что следует в настоящее время из наблюдений [1]), то задержка электронов с энергией 100 кэВ составит 33 мс.

Второй тип задержек связан с зависимостью времени пролета электронов от области ускорения (по всей видимости, в короне) до области ЖРИ (в хромосфере) от энергии электронов примерно как $E^{-1/2}$. Менее энергичные, т. е. с энергией 20 кэВ, электроны запаздывают на 20 мс по отношению к электронам с энергией больше 50 кэВ. Обратный характер задержек имеет место в модели описания частиц, захваченных в петельной структуре магнитного поля, с последующим их высыпанием в область подножий [4]. Время пребывания электронов в магнитной ловушке в приближении слабой диффузии, так же как и время парных соударений, пропорционально энергии в степени 3/2. Скорее всего, характер распространения ускоренных электронов во вспышечных петлях – более сложный [6 – 13], и простые закономерности для времени задержек могут не выполняться.

Проанализируем полученные результаты. Прежде всего отметим, что величина задержек изменяется от десятков миллисекунд до секунды. Максимальная величина задержек на стадии нарастания скорости счета ЖРИ составляет около 100 мс и возрастает до 1400 мс на стадии пика излучения. Более важным фактом является энергетическая зависимость спектра задержек (см. рис. 2, 4 и 6). Для вспышки 284, по каталогу BATSE на стадии роста интенсивности ЖРИ, аппроксимация спектра степенным законом приводит к значению показателя степени,



равному 1,5. Подобный спектр характерен для модели «захваченных частиц». Другими словами, можно предположить, что в начальный момент ускоренные электроны распределены преимущественно по поперечным импульсам. Они инжектируются в магнитную петлю с наличием точек отражения и становятся захваченными, совершая движение в магнитном поле между точками отражения. Питч-угол электронов уменьшается со временем в результате кулоновских соударений, а возможно, и при взаимодействии с МГД-волнами; это приводит к высыпанию в конус потерь и генерации жесткого рентгеновского излучения. Обратная ситуация должна иметь место на фазе пика скорости счета, когда ускорение происходит более эффективно и приводит к распределению электронов уже преимущественно по продольным импульсам. В этом случае более существенным для времени задержек является пролет электронов вдоль вспыхивающей петли. Он не может быть свободным, поскольку концентрация плазмы в петле возрастает примерно от 10^{10} до 10^{13} см^{-3} . Более того, некоторый вклад в величину задержек продолжают вносить отраженные электроны, и потому спектр задержек вряд ли должен соответствовать степенному закону с показателем, равным $-0,5$. Полученный при анализе спектров закон изменения задержек от уровня энергии и на стадии пика, и для всей вспышки в целом (см. рис. 2, кривые 2, 3 и 4) выражается степенной функцией с показателем степени $\alpha = -2$.

Более сложный характер спектра задержек получен нами для вспышки 2704 по

каталогу BATSE (см. рис. 6). На стадии нарастания скорости счета (кривая 1) спектр задержек по-прежнему аппроксимируется степенным законом с показателем, совпадающим (в пределах ошибки) с величиной 1,5. Другими словами, процесс ускорения на начальной фазе вспышки подобен таковому во вспышке 284. Однако на последующих фазах эволюции вспышки динамика ускорения и переноса электронов становится довольно сложной. Распределение высокоэнергичных электронов (выше 50 кэВ) по-прежнему остается преимущественным для поперечных импульсов, в то время как на меньших энергиях распределение по импульсам носит продольный характер. Хотя показатели степени аппроксимирующих функций для спектров, равные $\alpha = +2,2$ и $\alpha = -1,37$, не соответствуют ни значению 1,5, ни значению $-0,5$.

Итак, проведенный нами анализ показывает необходимость дальнейших исследований временных задержек с привлечением данных, относящихся к высокому энергетическому разрешению, для построения более детального спектра временных задержек жесткого рентгеновского излучения. Кроме того, следует рассмотреть характер и закономерности временных задержек в различных моделях как инжекции, так и распространения ускоренных электронов в плазме вспыхивающих петель.

Данные исследования проведены при частичной поддержке грантами Президиума РАН № 22 и Федеральной целевой программы «Кадры 1.5» N8524.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Aschwanden, M.J.** Particle acceleration and kinematics in solar flares [Текст] / M.J. Aschwanden // Space Sci. Rev. — 2002. — Vol. 101. — № 1. — P. 1–227.
2. **Aschwanden, M.J.** Electron time-of-flight differences in solar flares [Текст] / M.J. Aschwanden, R.A. Schwartz, D.M. Alt // Astrophys. J. — 1995. — Vol. 447. — № 2. — P. 923–935.
3. **Aschwanden, M.J.** Accuracy, uncertainties and delay distribution of electron time-of-flight measurements in solar flares [Текст] / M.J. Aschwanden, R.A. Schwartz // Astrophys. J. — 1995. — Vol. 455. — № 2. — P. 699–715.
4. **Ashwanden, M.J.** Electron trapping times and trap densities in solar flare loops measured with Compton and Yohkoh [Текст] / M.J. Aschwanden, R.V. Bynum, T. Kosugi T., [et al.] // Astrophys. J. — 1997. — Vol. 487. — № 2. — P. 936–955.
5. База данных NASA [Электронный ресурс]: NASA database. — Режим доступа: <ftp://legacy.gsfc.nasa.gov/compton/data/batse>.
6. **Petrosian, V.** On the spatial distribution of hard X-rays from solar flare loops [Текст] / V. Petrosian, T.Q. Donaghy // Astrophys. J. — 1999. — Vol. 527. — P. 945–957.
7. **Petrosian, V.** Stochastic acceleration of electrons and protons. I. Acceleration by parallel-propagating waves [Текст] / V. Petrosian, S. Liu // Astrophys. J. — 2004. — Vol. 610. — P. 550–571.
8. **Stepanov, A.V.** Electron-whistler interaction

in coronal loops and radiation signatures [Текст] / A.V. Stepanov, Y.T. Tsap // *Solar Physics*.—2002. —Vol. 211. — P. 135–154.

9. **Fletcher, L.** A model for hard X-ray emission from the top of flaring loops [Текст] / L. Fletcher, P.C.H. Martens // *Astrophys. J.*—1998. — Vol. 505. — P. 418–431.

10. **Chen, B.** The role of inverse Compton scattering in solar coronal hard X-ray and γ -ray sources [Текст] / B. Chen, T.S. Bastian // *Astrophys. J.* — 2012. — Vol. 750. P. 35 (16 p).

11. **Charikov, Yu.E.** Intensity and polarization of the hard X-ray radiation of solar flares at the top and footpoints of a magnetic loop [Текст] /

Yu.E. Charikov, V.F. Mel'nikov, I.V. Kudryavtsev // *Geomagnetism and Aeronomy*. — 2012. —Vol. 52. — P. 1021–1031.

12. **Kudryavtsev, I.V.** Hard X-rays of relativistic electrons accelerated in solar flares [Текст] / I.V. Kudryavtsev, Yu.E. Charikov // *Geomagnetism and Aeronomy*. — 2012. —Vol. 52. — P. 875–882.

13. **Zharkova, V.V.** Diagnostics of energetic electrons with anisotropic distributions in solar flares. I. Hard X-rays bremsstrahlung emission [Текст] / V.V. Zharkova, A.A. Kuznetsov, T.V. Siversky // *Astronomy and Astrophysics*. — 2010. — Vol. 512. — P. A8 (18 p.)

REFERENCES

1. **Aschwanden M.J.** Particle Acceleration and Kinematics in Solar Flares. *Space Sci. Revs.*, 2002, vol. 101, № 1, pp. 1–227.

2. **Aschwanden M.J., Schwartz R.A., Alt D.M.** Electron time-of-flight differences in solar flares. *Astrophys. J.*, 1995, vol. 447, № 2, pp. 923–935.

3. **Aschwanden M.J., Schwartz R.A.** Accuracy, uncertainties and delay distribution of electron time-of-flight measurements in solar flares. *Astrophys. J.*, 1995, vol. 455, № 2, pp. 699–715.

4. **Aschwanden V.J., Bynum R.V., Kosugi T., Hudson H.S., Schwartz R.A.** Electron trapping times and trap densities in solar flare loops measured with Compton and Yohkoh. *Astrophys. J.*, 1997, vol. 487, pp. 936–955.

5. **NASA database.** Available at: ftp://legacy.gsfc.nasa.gov/compton/data/batse.

6. **Petrosian V., Donaghy T.Q.** On the Spatial Distribution of Hard X-Rays from Solar Flare Loops. *Astrophys. J.*, 1999, vol.527, pp. 945–957.

7. **Petrosian V., Liu S.** Stochastic Acceleration of Electrons and Protons. I. Acceleration by Parallel-Propagating Waves. *Astrophys. J.*, 2004, vol. 610,

pp. 550–571.

8. **Stepanov A.V., Tsap Y.T.** Electron-Whistler Interaction in Coronal Loops and Radiation Signatures. *Solar Physics*, 2002, vol.211, pp.135–154.

9. **Fletcher L., Martens, P.C.H.** A Model for Hard X-Ray Emission from the Top of Flaring Loops. *Astrophys. J.*, 1998, vol.505, pp. 418–431.

10. **Chen B., Bastian T.S.** The Role of Inverse Compton Scattering in Solar Coronal Hard X-Ray and γ -Ray Sources. *Astrophys. J.*, 2012, vol.750:35, (16pp).

11. **Charikov Yu.E., Mel'nikov V.F., Kudryavtsev I.V.** Intensity and polarization of the hard X-ray radiation of solar flares at the top and footpoints of a magnetic loop. *Geomagnetism and Aeronomy*, 2012, vol.52, pp. 1021–1031.

12. **Kudryavtsev I.V., Charikov Yu.E.** Hard X rays of relativistic electrons accelerated in solar flares. *Geomagnetism and Aeronomy*, 2012, vol.52, pp. 875–882.

13. **Zharkova V.V., Kuznetsov A.A., Siversky T.V.** Diagnostics of energetic electrons with anisotropic distributions in solar flares. I. Hard X-rays bremsstrahlung emission. *Astronomy and Astrophysics*, 2010, vol.512, A8, 18p.

ЧАРИКОВ Юрий Евгеньевич — кандидат физико-математических наук, доцент кафедры космических исследований Санкт-Петербургского государственного политехнического университета, старший научный сотрудник лаборатории космических лучей Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
y.charikov@yandex.ru

ГЛОБИНА Вероника Игоревна — студентка Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
gvil109@gmail.com

СКЛЯРОВА Елена Михайловна — научный сотрудник Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

194021, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26
sklyarova.mhd@mail.ioffe.ru

УДК 001+54

А.Г. Морачевский, Е.Г. Фирсова

**АКАДЕМИК ПАВЕЛ ИВАНОВИЧ ВАЛЬДЕН
(к 150-летию со дня рождения)**

A.G. Morachevskij, E.G. Firsova

St. Petersburg State Polytechnical University,
29 Politekhnikeskaya St., St. Petersburg, Russia.

**ACADEMICIAN PAVEL IVANOVICH WALDEN
(On the Occasion of His 150th Birthday)**

Статья посвящена жизни и научной деятельности П.И. Вальдена (1863 – 1957), выдающегося ученого-химика и историка химии. Он принимал участие в основании Политехнического института в Санкт-Петербурге, затем был ректором Рижского политехнического института, ординарным академиком Петербургской Академии наук, иностранным почетным членом АН СССР. Ученый известен, прежде всего, трудами по физической химии и электрохимии неводных растворов, а также по стереохимии.

ВАЛЬДЕН, РИЖСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ, ПЕТЕРБУРГСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК, ФИЗИЧЕСКАЯ ХИМИЯ.

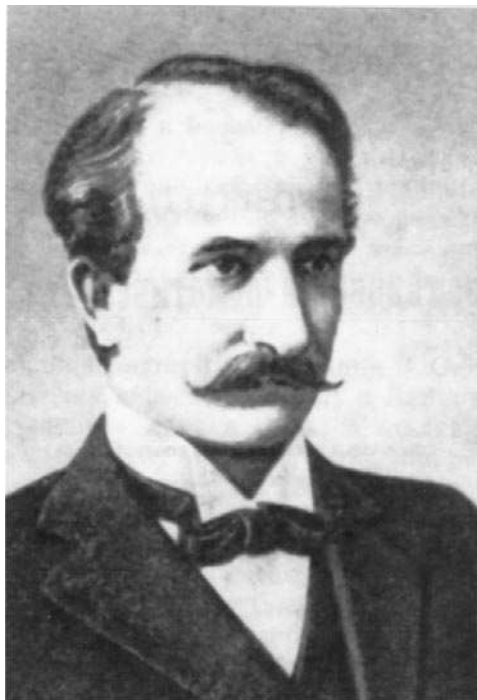
The article is devoted to a life and scientific activities of P.I. Walden (1863 – 1957), who was an outstanding chemist and a historian of chemistry. He took part in the foundation of Polytechnical Institute in Saint Petersburg, then was a rector of Riga Polytechnical Institute, an ordinary academician of Petersburg Academy of Science, a foreign honorary member of the Academy of Science of the USSR. The scientist is known, first of all, for his works on physical chemistry and electrochemistry of non-aqueous solutions as well on stereo-chemistry.

WALDEN, RIGA POLYTECHNICAL INSTITUTE, ACADEMY OF SCIENCE OF PETERSBURG, PHYSICAL CHEMISTRY.

В августе 1900 года при учебном отделе Министерства финансов России была создана «Комиссия по выработке положений о Политехническом институте в Санкт-Петербурге в составе отделений Коммерческого, Электротехнического, Кораблестроительного и Металлургического». Формированием комиссии, очень многочисленной (около 70 человек), занимался товарищ (заместитель) министра финансов В.И. Ковалевский, ее председателем был

назначен инженер-генерал Н.П. Петров. В состав комиссии вошли выдающиеся ученые как из Петербурга, так и из других городов страны, среди которых были профессор Д.И. Менделеев, А.С. Попов, Н.А. Меншуткин, директора Киевского, Варшавского и Петербургского политехнических институтов, представители промышленности и торговли [1].

Среди членов комиссии был профессор химии Рижского политехникума



Павел Иванович Вальден
(1863–1957)

Павел Иванович (Пауль) Вальден. Он принимал активное участие в разработке программ химических дисциплин, в проектировании лабораторий, оборудования в Химическом корпусе. 27 июля 1901 года П.И. Вальден был утвержден в должности декана Металлургического отделения Петербургского политехнического института. Предполагалось также, что одновременно он займет должность ординарного профессора общей химии. Однако уже в октябре того же года П.И. Вальден сообщил о невозможности, в связи со сложившимися обстоятельствами, занять этот пост, порекомендовав в качестве декана Н.А. Меншуткина, который и был назначен 1 ноября 1901 года. Должность ординарного профессора общей химии занял Н.С. Курнаков.

П.И. Вальден родился 14 (26) июля 1863 года на хуторе Пипены Лифляндской губернии Российского государства (в Латвии) в многодетной крестьянской семье. В 1876 году он с отличием окончил окружную школу в г. Цесисе, а в 1882 году столь же успешно завершил среднее образование в Рижском реальном училище. В декабре

1882 года П.И. Вальден стал студентом Рижского политехнического училища (Рижского политехникума), основанного в 1862 году. Преподавание велось на немецком языке, по существу родном для будущего ученого, хотя по национальности его считают латышом. Сам П.И. Вальден в автобиографии национальность не указывал, ограничиваясь словами «имел лютеранское вероисповедание». В 1896 году училище было преобразовано в Государственный Рижский политехнический институт с обучением на русском языке. Этот институт имел репутацию образцового учебного заведения с высоким уровнем подготовки специалистов, был крупным научным центром.

Почти одновременно с поступлением П.И. Вальдена в Рижский политехникум должность профессора химии в нем занял молодой Вильгельм Оствальд (1853 – 1932, лауреат Нобелевской премии 1909 г.), вернувшийся в родной город из Дерпта (ныне г. Тарту), в университете которого он учился, а затем преподавал. Лекции В. Оствальда, общение с ним, лабораторные занятия под его руководством – все это оказало сильнейшее влияние на всю последующую научную деятельность П. Вальдена. В 1887 году была опубликована совместная работа В. Оствальда и П. Вальдена относительно изменения молярной электропроводности кислот и оснований по мере их разбавления. В том же году П. Вальден был принят в члены Русского физико-химического общества.

В 1888 году П. Вальден с отличием окончил химико-технологическое отделение Рижского политехникума, получив звание инженера-химика. К этому времени В. Оствальд переехал в Лейпциг (Германия), заняв место руководителя кафедры физической химии в Лейпцигском университете. Сменивший его в Риге профессор К.А. Бишоф (1855 – 1908) был химиком-органиком. П. Вальден принял его предложение остаться ассистентом на кафедре химии (с 1890 г. он занимал должность старшего ассистента, с 1892 г. – доцента) [3]. Началась интенсивная педагогическая и научная работа П. Вальдена в Рижском политехническом институте, которая про-



должалась до 1915 года. П. Вальден принял самое активное участие в работах в области стереохимии органических соединений — научном направлении, которое развивал К. Бишоф. Таким образом, на весь период активной научной деятельности у П. Вальдена сложилось два параллельных научных направления: физическая химия и электрохимия неводных растворов (тематика, близкая В. Оствальду), а также стереохимия (тематика, близкая К. Бишофу). В сентябре 1891 года П. Вальден с высшей оценкой защитил в Лейпцигском университете диссертацию на тему «О величинах сродства некоторых органических кислот и их отношении к конституции последних», получив степень доктора философии (Ph.D.). Однако для дальнейшего продвижения по службе ему была нужна ученая степень, полученная в одном из российских университетов. После сдачи соответствующих экзаменов весной 1893 года П. Вальден защитил магистерскую диссертацию на тему «Опыт исследования осмотических явлений с осадочными пленками» в Новороссийском университете (г. Одесса). Уже в 1894 году молодой ученый получает штатное место профессора аналитической и физической химии в Рижском политехникуме. П. Вальден продолжает интенсивные научные исследования как в области органической, так и физической химии. Особенно тесными становятся научные и личные связи с В. Оствальдом. В 1903 году П. Вальден написал первую биографию своего учителя и друга.

Работы в области стереохимии послужили основой диссертации на соискание ученой степени доктора химии, которую П. Вальден защитил 7 марта 1899 года в Петербургском университете. Его официальными оппонентами были профессора Д.П. Коновалов (1856 — 1929) и Н.А. Меншуткин (1842 — 1907). После защиты диссертации П. Вальден фокусирует свою научную деятельность преимущественно на физико-химических исследованиях, занимается изучением электрической проводимости растворов различных солей в высокополярных растворителях. Он устанавливает связь между эквивалентной электрической

проводимостью при бесконечном разбавлении и вязкостью (правило Вальдена). Объем выполненных П.И. Вальденом экспериментальных исследований очень велик.

В начале 1902 года П. Вальден избирается на должность директора Рижского политехнического института и утверждается в этой должности 15 апреля 1902 года сроком на четыре года. В связи с волнениями студентов осенью 1905 года П. Вальден подает в отставку с поста директора, а с 1 января 1906 г. назначается деканом химического факультета.

В начале XX века в Императорской (Петербургской) Академии наук было предусмотрено два места ординарных академиков по химии. Их занимали химик-органик Ф.Ф. Бейльштейн (1838 — 1906) и физико-химик Н.Н. Бекетов (1827 — 1911). После кончины Ф.Ф. Бейльштейна его место некоторое время оставалось вакантным, а в 1910 году П. Вальден был избран действительным членом Академии наук по специальности «Технология и химия, приспособленная к искусствам и ремеслам». В представлении, подписанном целым рядом ученых (среди которых были Н.Н. Бекетов, В.И. Вернадский, А.П. Карпинский), отмечались заслуги П. Вальдена прежде всего в области стереохимии. В порядке исключения П. Вальдену было предоставлено право временно оставаться в Риге и приезжать в Петербург лишь для участия в заседаниях Академии наук. Начавшаяся летом 1914 года Первая мировая война привела к тому, что П. Вальден так и не переехал на постоянное жительство в Петроград, как это полагалось академиком в те годы.

Период с 1907 по 1914 гг. был особенно продуктивным в научной деятельности П. Вальдена: он участвует в целом ряде крупных российских и международных конференций, включая два Менделеевских съезда (в 1907 и в 1911 гг.), избирается почетным членом целого ряда академий и научных обществ. Продолжается дружба П. Вальдена со своим учителем В. Оствальдом, поддерживаются научные контакты с крупнейшими химиками того времени: С. Аррениусом (1859 — 1927, лауреат Нобелевской премии 1903 г.), Я. Вант-Гоффом

(1852 – 1911, лауреат Нобелевской премии 1901 г.), Э. Фишером (1852 – 1919, лауреат Нобелевской премии 1902 г.), У. Рамзаем (1852 – 1916, лауреат Нобелевской премии 1904 г.). Дважды, в 1913 и 1914 гг., и кандидатура П. Вальдена выдвигалась на соискание Нобелевской премии.

В июле 1915 года Рижский политехнический институт и вместе с ним П. Вальден были эвакуированы в Москву. В период с 1915 по 1918 гг. ученый не имел собственной лаборатории и не мог заниматься экспериментальными исследованиями. Он заканчивает книгу «Очерк истории химии в России» (1915), читает лекции по физической химии в Московском университете, в других высших учебных заведениях Москвы. Он принимает деятельное участие в работе комиссии по изучению естественных производительных сил России, руководимой В.И. Вернадским, возглавляет Московское отделение Военно-химического комитета.

1 января 1917 года П. Вальдена утвердили ректором Рижского политехнического института. Согласно Брестскому мирному договору (март 1918 г.), основной состав профессоров и студентов института во главе с П. Вальденом вернулся в Ригу, оккупированную немецкими войсками. Другая часть преподавателей и студентов приняла решение остаться в России, и они создали основу нового института в г. Иваново-Вознесенске (ныне г. Иваново).

Политическая нестабильность в Латвии, отсутствие условий для полноценной работы – все это привело к тому, что в 1919 году П. Вальден с семьей переехал в Германию и там занял должность профессора неорганической химии в Ростокском университете.

Контакты П. Вальдена с российскими химиками не прекратились: в 1924 году ему направили предложение возглавить кафедру химии в Петроградском университете, но он его не принял. В Петрограде был

опубликован целый ряд книг П. Вальдена. В 1927 году его единогласно избрали почетным членом АН СССР. В 1934 году ученый принимает участие в работе VII Менделеевского съезда, посвященного столетию со дня рождения Д.И. Менделеева. П. Вальден приехал во главе представительной немецкой делегации и выступил на съезде с большим докладом «Электролиты и растворители».

В 1934 году, в семидесятилетнем возрасте, П. Вальден выходит в отставку, полностью посвящает свое время исследованиям по истории химии и публикует ряд капитальных трудов в этой области. В ночь с 24 на 25 апреля 1942 года, при бомбардировке г. Росток английской авиацией, сгорел дом Вальдена, погибли огромная библиотека, архивные материалы, рукописи, письма ученых. После этой беды П. Вальден переехал в Берлин, затем во Франкфурт-на-Майне. Финальным его пристанищем стал Тюбингенский университет (г. Тюбинген, Германия). В 1950 году он был удостоен званий почетного доктора и почетного профессора Тюбингенского университета. Лекции по истории химии П. Вальден читал вплоть до 90-летнего возраста, т. е. до июля 1953 года.

Павел Иванович Вальден скончался 22 января 1957 года на девяносто четвертом году жизни и был похоронен на кладбище Бергфридгоф в Тюбингене.

Это был большой ученый, всегда дружелюбно относившийся к своей Родине – России. Он был удостоен множества почетных званий и наград за выдающийся вклад в развитие химической науки, а также истории химии.

Жизнь и научная деятельность П.И. Вальдена наиболее полно описаны в книге Я.П. Страдыня и Ю.И. Соловьева [2]; этой теме также посвящен ряд очерков [3 – 6].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Меншуткин, Б.Н. История Санкт-Петербургского политехнического института (1899 – 1930) [Текст] / Б.Н. Меншуткин. – СПб.: Изд-во Политехн. ун-та, 2012. – 508 с.
2. Страдынь, Я.П. Павел Иванович (Павль) Вальден: 1863 – 1957 [Текст] / Я.П. Стра-

дынь, Ю.И. Соловьев. – М.: Наука, 1988. – 287 с.

3. Страдынь, Я. Химия в Рижском политехническом институте (1862 – 1918) [Текст] / Я. Страдынь // Уч. зап. Латв. гос. ун-та. Хим. ф-т. – 1958. – Т. XXII. – № 6. – С. 307–325.



4. **Страдынь, Я.П.** К биографии Пауля Вальдена [Текст]: Из истории естествознания и техники Прибалтики в 8 тт. Т. 1 / Я.П. Страдынь. — Рига: Зинатне, 1968. — С. 73–79.

5. **Соловьев, Ю.И.** Академик П.И. Вальден. К 125-летию со дня рождения [Текст] / Ю.И.

Соловьев, Я.П. Страдынь // Вестник АН СССР. — 1988. — № 10. — С. 112–121.

6. **Морачевский, А.Г.** Академик Павел Иванович Вальден [Текст] / А.Г. Морачевский // Журнал прикладной химии. — 2003. — Т. 76. — № 7. — С. 1220–1223.

REFERENCES

1. **Menshutkin B.N.** Istoriiia Sankt-Peterburgskogo politekhnicheskogo instituta (1899 — 1930). St. Petersburg, Polytechnical University Publishing House, 2012, 508 p. (rus)

2. **Stradyn' Ya.P., Solov'ev Yu.I.** Pavel Ivanovich (Paul') Val'den: 1863 — 1957. Moscow, Nauka, 1988, 287 p. (rus)

3. **Stradyn' Ya.P.** Khimiiia v Rizhskom politekhnicheskome institute (1862 — 1918). Uch. zap. Latv. gos. un-ta. Khim. f-t, 1958, Vol. XXII, № 6,

pp. 307–325. (rus)

4. **Stradyn' Ya.P.** K biografii Paulia Val'dena. Iz istorii estestvoznaniia i tekhniki Pribaltiki. Riga: Zinatne, 1968, pp. 73–79. (rus)

5. **Solov'ev Yu.I., Stradyn' Ya.P.** Akademik P.I. Val'den. K 125-letiiu so dnia rozhdeniia. Vestnik AN SSSR, 1988, № 10, pp. 112–121. (rus)

6. **Morachevskii A.G.** Akademik Pavel Ivanovich Val'den. Zhurnal prikladnoi khimii, 2003, Vol. 76, № 7, pp. 1220–1223. (rus)

МОРАЧЕВСКИЙ Андрей Георгиевич — доктор технических наук, профессор кафедры «Физическая химия, микро- и нанотехнологии» Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
tmet@ftim.spbstu.ru

ФИРСОВА Елена Германовна — кандидат технических наук, доцент кафедры «Физическая химия, микро- и нанотехнологии» Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

195251, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
tmet@ftim.spbstu.ru

Научное издание

**НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ ВЕДОМОСТИ
САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА.
ФИЗИКО-МАТЕМАТИЧЕСКИЕ НАУКИ
«ST. PETERSBURG STATE POLYTECHNICAL UNIVERSITY JOURNAL.
PHYSICS AND MATHEMATICS»
№ 3 (177) 2013**

Учредитель — Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего профессионального образования «Санкт-Петербургский государственный политехнический университет»

Журнал зарегистрирован Федеральной службой по надзору в сфере информационных технологий и массовых коммуникаций (Роскомнадзор).
Свидетельство о регистрации ПИ № ФС77-51457 от 19.10.2012 г.

Редакция

д-р физ.-мат. наук, профессор *В.К. Иванов* — председатель ред. коллегии
д-р физ.-мат. наук, профессор *А.Э. Фотиади* — зам. председателя ред. коллегии
канд. физ.-мат. наук, доцент *В.М. Капралова* — ответственный секретарь
канд. физ.-мат. наук *О.А. Ящуржинская* — научный редактор, корректор
А.С. Колгатина — технический секретарь

Телефон редакции 294-22-85

E-mail: physics@spbstu.ru

Компьютерная верстка *А.Н. Смирнова*

Директор Издательства Политехнического университета *А.В. Иванов*

Лицензия ЛР № 020593 от 07.08.97

Подписано в печать 27.09.2013. Формат 60×84 1/8. Бум. тип. № 1.
Печать офсетная. Усл. печ. л. 31,32. Уч.-изд. л. 31,32. Тираж 1000. Заказ

Санкт-Петербургский государственный политехнический университет
Издательство Политехнического университета
член Издательско-полиграфической ассоциации университетов России
Адрес университета и издательства: 195251, Санкт-Петербург, ул. Политехническая, д. 29.

УСЛОВИЯ ПУБЛИКАЦИИ СТАТЕЙ

в журнале «Научно-технические ведомости Санкт-Петербургского государственного политехнического университета. Физико-математические науки»

ОБЩИЕ ПОЛОЖЕНИЯ

Журнал «Научно-технические ведомости Санкт-Петербургского государственного политехнического университета. Физико-математические науки» является периодическим печатным научным рецензируемым изданием. Зарегистрирован в Федеральной службе по надзору в сфере информационных технологий и массовых коммуникаций (Свидетельство ПИ №ФС77-52144 от 11 декабря 2012 г.) и распространяется по подписке агентства «Роспечать» (индекс издания 71823).

С 2008 г. выпускается в составе сериального периодического издания «Научно-технические ведомости СПбГПУ» (ISSN 1994-2354). Сохраняя преемственность и продолжая научные и публикационные традиции сериального издания «Научно-технические ведомости СПбГПУ», издается под двойными международными стандартными сериальными номерами **ISSN 1994-2354, (сериальный) ISSN 2304-9782**. С 2012 г. начат выпуск журнала в двуязычном оформлении.

Издание входит в Перечень ведущих научных рецензируемых журналов и изданий (перечень ВАК) и принимает для печати материалы научных исследований, а также статьи для опубликования основных результатов диссертаций на соискание ученой степени доктора наук и кандидата наук по следующим основным научным направлениям: **Физика, Математика, Механика, Астрономия**. Научные направления журнала учитываются ВАК Минобрнауки РФ при защите докторских и кандидатских диссертаций в соответствии с Номенклатурой специальностей научных работников.

Журнал представлен в Реферативном журнале ВИНИТИ РАН и включен в фонд научно-технической литературы (НТЛ) ВИНИТИ РАН, а также в международную систему по периодическим изданиям "Ulrich's Periodicals Directory". Индексирован в базе данных «Российский индекс научного цитирования» (РИНЦ).

Периодичность выхода журнала – 4 номера в год.

Редакция журнала соблюдает права интеллектуальной собственности и со всеми авторами научных статей заключает издательский лицензионный договор.

2. ТРЕБОВАНИЯ К ПРЕДСТАВЛЯЕМЫМ МАТЕРИАЛАМ

2.1. Оформление материалов

1. Объем статей докторов наук, профессоров, докторантов, соискателей ученой степени доктора наук, как правило, – 12–20 страниц формата А-4. Количество рисунков не должно превышать четырех, таблиц – трех, литературных источников – пятнадцати.

2. Объем статей преподавателей, сотрудников, соискателей ученой степени кандидата наук, как правило, – 8–15 страниц формата А-4, объем статей аспирантов – 8 страниц формата А-4. Количество рисунков не должно превышать трех, таблиц – двух, литературных источников – десяти.

3. Авторы должны придерживаться следующей обобщенной структуры статьи: вводная часть (0,5–1 стр., актуальность, существующие проблемы); основная часть (постановка и описание задачи, изложение и суть основных результатов); заключительная часть (0,5–1 стр., предложения, выводы), список литературы (оформление по ГОСТ 7.07-2009).

4. Число авторов статьи не должно превышать трех человек.

5. Набор текста осуществляется в редакторе MS Word, формулы – в редакторе MS Equation. Таблицы набираются в том же формате, что и основной текст.

Шрифт – TNR, размер шрифта основного текста – 14, интервал – 1,5, таблицы большого размера могут быть набраны 12 кеглем. Параметры страницы: поля слева – 3 см, сверху, снизу – 2,5 см, справа – 2 см, текст размещается без переносов. Абзацный отступ – 1 см.

2.2. Представление материалов

Вместе с материалами статьи должны быть обязательно представлены:

- номер УДК в соответствии с классификатором (в заголовке статьи);
- аннотация (2–3 предложения) на русском и английском языках;
- ключевые слова (5–7) на русском и английском языках;
- сведения об авторах на русском и английском языках: ФИО, место работы, должность, ученое звание, ученая степень, контактные телефоны, e-mail;
- аспиранты предоставляют документ отдела аспирантуры, заверенный печатью;
- рецензия на имя зам. главного редактора, подписанная специалистом, имеющим ученую степень доктора наук и/или ученое звание профессора. Рецензия должна быть **ОБЯЗАТЕЛЬНО** заверена в отделе кадров. Рецензент несет ответственность за содержание статьи, достоверность представленных материалов.
- акт экспертизы о возможности опубликования материалов в открытой печати.

Предоставление всех материалов осуществляется по электронной почте на адрес редакции: physics@spbstu.ru.

2.3. Рассмотрение материалов

Предоставленные материалы (п. 2.2) первоначально рассматриваются редакционной коллегией и передаются для рецензирования. После одобрения материалов, согласования различных вопросов с автором (при необходимости) редакционная коллегия сообщает автору решение об опубликовании статьи. В случае отказа в публикации статьи редакция направляет автору мотивированный отказ.

При отклонении материалов из-за нарушения сроков подачи, требований по оформлению или как не отвечающих тематике журнала материалы не публикуются и не возвращаются.

Редакционная коллегия не вступает в дискуссию с авторами отклоненных материалов.

Публикация материалов аспирантов очной бюджетной формы обучения осуществляется бесплатно в соответствии с очередностью.

При поступлении в редакцию значительного количества статей их прием в очередной номер может закончиться **ДОСРОЧНО**.

Более подробную информацию можно получить по телефону редакции:

(812) 294-22-85 с 10.00 до 18.00 – Александра Сергеевна

или по e-mail: physics@spbstu.ru