

# СИБИРСКИЙ ФИЗИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ

Научный журнал  
Основан в 2006 году

2018. Том 13, № 2

---

---

## СОДЕРЖАНИЕ

### Теоретическая и математическая физика

*Муминов Х. Х., Шокиров Ф. Ш.* Динамика взаимодействия двумерных доменных стенок с топологическим вихрем 5

### Физика жидкости, нейтральных и ионизованных газов

*Кудашкин Д. В., Саломатов В. В., Саломатов А. В.* Установившийся тепловой режим потока жидкости в круглом канале в условиях диэлектрического нагрева 16

*Козлов В. В., Грек Г. Р., Литвиненко Ю. А., Шмаков А. Г., Вихорев В. В.* Диффузионное горение плоской микроструи водорода, истекающей из щелевого микросопла на до- и сверхзвуковой скорости 23

*Козлов В. В., Грек Г. Р., Литвиненко Ю. А., Шмаков А. Г., Вихорев В. В.* Диффузионное горение круглой микроструи водорода при до- и сверхзвуковой скорости истечения из сопла 37

*Труфанов Д. Ю., Завьялов А. П., Зобов К. В., Сызранцев В. В., Бардаханов С. П.* Анализ изменения элементного примесного состава при получении нанопорошка диоксида кремния методом испарения электронным пучком 53

*Клементьева И. Б., Тепляков И. О., Виноградов Д. А., Ивочкин Ю. П.* Режимы электро-вихревого течения в полусферической геометрии (краткое сообщение) 61

### Физика твердого тела, полупроводников, наноструктур

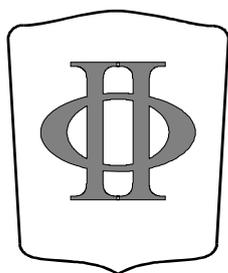
*Борисов Г. М., Гольдорт В. Г., Журавлёв К. С., Ковалёв А. А., Кочубей С. А., Ледовских Д. В., Малин Т. В., Рубцова Н. Н.* Генерация второй гармоники в тонкой пленке  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  64

*Сидоров Н. В., Теплякова Н. А., Титов Р. А., Палатников М. Н.* Структурный беспорядок и оптические характеристики конгруэнтных кристаллов ниобата лития, выращенных из расплавов, легированных бором 70

*Аликулов М. Н.* Влияние примесных центров и процессов рекомбинации на фоточувствительность фотоэлементов 80

## Физика химическая, биологическая, медицинская

<i>Кручинин Н. Ю., Кучеренко М. Г.</i> Молекулярно-динамическое моделирование конформационной структуры полиамфолитов на поверхности золотой наночастицы	86
<i>Кручинина М. В., Кручинин В. Н., Володин В. А., Прудникова Я. И., Громов А. А.</i> Спектроскопия комбинационного рассеяния света сыворотки крови у пациентов с колоректальным раком с различной локализацией метастазов (пилотное исследование)	95
Сведения об авторах	101
Информация для авторов	104



### Сибирский физический журнал

Журнал адресован профессорско-преподавательскому составу университетов, научным работникам, аспирантам и студентам, которые интересуются новейшими результатами фундаментальных и прикладных исследований по различным направлениям физики и физико-технической информатики.

Редакция принимает к опубликованию обзоры и оригинальные научные статьи по тем направлениям физики, которые, главным образом, представлены на кафедрах физического факультета НГУ. Принимаются также к рассмотрению статьи по другим направлениям, если в ходе рецензирования подтверждается их высокий научный статус.

Мы приглашаем научные коллективы и отдельных авторов направлять к нам для опубликования материалы по следующим основным разделам:

- квантовая оптика, квантовая электроника;
- радиофизика и электроника;
- теоретическая и математическая физика;
- физика жидкости, нейтральных и ионизованных газов;
- физика высоких энергий, ускорителей и высокотемпературной плазмы;
- физика твердого тела, полупроводников, наноструктур;
- физика химическая, биологическая и медицинская;
- информатика, информационно-коммуникационные технологии;
- учебно-методическое обеспечение преподавания физики.

Периодичность выхода издания – 4 раза в год. Журнал включен в перечень ВАК выпускаемых в Российской Федерации научных и научно-технических изданий, в которых рекомендуется публикация основных результатов диссертаций на соискание ученой степени кандидата и доктора наук.

# SIBERIAN JOURNAL OF PHYSICS

Scientific Journal  
Since 2006  
In Russian

2018. Volume 13, № 2

---

---

## CONTENTS

### Radiophysics and Electronics

- Muminov Kh. Kh., Shokirov F. Sh.* Dynamics of the Interaction of Two-Dimensional Domain Walls with a Topological Vortex 5

### Physics of a fluid, neutral and ionized gases

- Kudashkin D. V., Salomatov V. V., Salomatov A. V.* Installed Thermal Range of the Round Channel in the Conditions of Dielectric Heating 16
- Kozlov V. V., Grek G. R., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G., Vikhorev V. V.* Diffusion Combustion of Plane Hydrogen Microjet Efflux from Slotted Micronozzle at Sub- and Supersonic Velocity 23
- Kozlov V. V., Grek G. R., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G., Vikhorev V. V.* Diffusion Combustion of Hydrogen Round Microjet at Sub- and Supersonic Velocity Efflux from Nozzle 37
- Tufanov D. Yu., Zavjalov A. P., Zobov K. V., Syzrantsev V. V., Bardakhanov S. P.* Analysis of Changes in the Elemental Impurity Composition in the Silica Nanopowder Synthesis by Electron Beam Evaporation 53
- Klementyeva I. B., Teplyakov I. O., Vinogradov D. A., Ivochkin Yu. P.* Modes of Electro vortex Flows Forming in Hemispherical Geometry 61

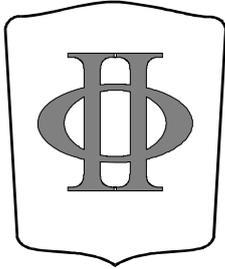
### Solid-State and Semiconductor Physics, Physics of Nanostructures

- Borisov G. M., Gol'dort V. G., Zhuravlev K. S., Kovalyov A. A., Kochubei S. A., Ledovskikh D. V., Malin T. V., Rubtsova N. N.* Second Harmonic Generation in  $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$  Thin Film 64
- Sidorov N. V., Teplyakova N. A., Titov R. A., Palatnikov M. N.* Structure Disorder and Optical Characteristics of Congruent Lithium Niobate Crystals Grown from Boron Doped Melts 70
- Alikulov M. N.* Influence of Impurity Centers and Recombination Processes on Photoelectricity of Photoelements 80

### Chemical, Biological and Medical Physics

- Kruchinin N. Yu., Kucherenko M. G.* Molecular Dynamics Simulation of Conformational Structures Polyampholytes on the Surface of Gold Nanoparticle 86
- Kruchinina M. V., Kruchinin V. N., Volodin V. A., Prudnikova Ya. I., Gromov A. A.* Spectroscopy of Combination Scattering of the Light for Blood Serum in Patients with Colorectal Cancer with Various Localization of Metastases (Pilot Study) 95

- Our Contributors 101
- Instructions to Contributors 104



## Siberian Journal of Physics

The magazine is addressed to the faculty of universities, science officers, post-graduate students and students who are interested in the newest results fundamental and applied researches in various directions of physics and physico-technical computer science.

Edition accepts to publication reviews and original scientific articles in those directions of physics which, mainly, are presented on faculties of physical faculty of NSU. Are accepted also to viewing article in other directions if during reviewing their high title proves to be true

We invite scientific personnels and separate authors to guide to us for publication materials on following basic sections:

- Quantum optics, quantum electronics;
- Radiophysics and electronics;
- The theoretical and mathematical physics;
- Physics of a fluid, neutral and ionized gases;
- High-energy and accelerator physics, physics of high-temperature plasma;
- Solid-state and semiconductor physics, physics of nanostructures;
- Chemical, biological and medical physics;
- Computer science, information-communication technologies;
- Educational and methodical provision of teaching of physics

Periodicity of an exit of the edition – 4 times a year. The magazine is included in list Higher Attestation Committee of scientific and technical editions in Russian Federation in which the publication of the basic results of dissertations on competition of a scientific degree of the doctor and candidate of sciences is recommended.

*Editor in Chief* Andrej V. Arzhannikov  
*Executive Secretary* Sofiya A. Arzhannikova

### *Editorial Board of the Journal*

S. V. Alekseenko, A. V. Arzhannikov, A. L. Aseev, S. N. Bagaev, A. E. Bondar  
S. A. Dzyuba, S. I. Eidelman, V. S. Fadin, V. M. Fomin, A. A. Ivanov, B. A. Knyazev, V. V. Kozlov, E. V. Kozyrev  
A. V. Latyshev, I. B. Logashenko, V. P. Maltsev, A. G. Pogosov, A. L. Reznik, A. V. Shalagin  
V. I. Telnov, S. V. Tsibulya

*The series is published quarterly in Russian since 2006  
by Novosibirsk State University Press*

*The address for correspondence*  
Physics Department, Novosibirsk State University  
Pirogov Street 2, Novosibirsk, 630090, Russia  
Tel. +7 (383) 363 44 25

*E-mail address:* [physics@vestnik.nsu.ru](mailto:physics@vestnik.nsu.ru)

*On-line version:* <http://elibrary.ru>; <http://www.phys.nsu.ru/vestnik/>

УДК 519.6 + 530.1  
DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-5-15

**Х. Х. Муминов, Ф. Ш. Шокиров**

*Физико-технический институт им. С. У. Умарова АН РТ  
пр. Айни, 299/1, Душанбе, 734063, Таджикистан*

*khikmat@inbox.ru, shokirov@rambler.ru*

## ДИНАМИКА ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ДВУМЕРНЫХ ДОМЕННЫХ СТЕНОК С ТОПОЛОГИЧЕСКИМ ВИХРЕМ

Проведено численное исследование динамики трехсолитонных взаимодействий 180-градусных доменных стенок с топологическим вихрем (солитоном) белавин-поляковского типа в фазовом пространстве  $(2+1)$ -мерной анизотропной  $O(3)$  инвариантной нелинейной сигма-модели. Получены модели взаимодействия топологических структур типа кинк-вихрь-антикинк, где наблюдаются процессы аннигиляции доменных стенок и полного распада топологических вихрей на локализованные возмущения, обладающие единичным значением индекса Кронекера. Установлено, что в случае противоположного направления поля аннигилирующие доменные стенки поглощают часть энергии топологического вихря, эквивалентной единице индекса Кронекера. В случае доменных стенок одинаковой полярности в зависимости от блоховской или нееловской структуры межфазных границ процесс их аннигиляции происходит соответственно без поглощения энергии топологического вихря или с поглощением энергии, эквивалентной значению двух единиц индекса Кронекера. На основе методов теории конечных разностных схем с применением свойств стереографической проекции предложен комплексный программный модуль, реализующий алгоритм численного расчёта эволюции трехсолитонных взаимодействий в расслоенном пространстве.

*Ключевые слова:* трехсолитонное взаимодействие, топологический вихрь, доменная стенка, нелинейная сигма-модель, численное моделирование, расслоенное пространство.

### Введение

Нелинейные сигма-модели как эффективные теории безмассовых возбуждений впервые возникли в задаче, связанной с теорией трех псевдоскалярных пионов ( $\pi$ -мезонов), которые отождествлялись с псевдоскалярными полями. Для описания динамики изотопического триплета пионов было предложено использование симметричного псевдоскалярного трехкомпонентного поля  $\mathbf{S}(s_i)$ ,  $i = 1, 2, 3$ . Взаимодействие в данных моделях вводится геометрическим образом, что обуславливает их разнообразные приложения в локальной квантовой и классической теориях поля. Нелинейные сигма-модели применяются, в частности, для описания таких явлений, как квантовый эффект Холла,

сверхтекучего  $^3\text{He}$ , антиферромагнитных спиновых цепочек, непрерывного классического двумерного ферромагнетика Гейзенберга [1–3].

Исследования настоящей работы проведены в рамках  $O(3)$  инвариантной нелинейной сигма-модели, которая описывает киральное поле на двумерной сфере  $S^2 \in \mathbb{R}^3$ . Для анизотропного случая  $(2+1)$ -мерной  $O(3)$  нелинейной сигма-модели действие имеет следующий вид:

$$S = \int L d^4x = \int g \left[ \partial_\mu s_a \partial^\mu s_a + s_3^2 - 1 \right] d^4x, \\ \mu = 0, 1, 2; \quad a = 1, 2, 3; \quad g(s) = 1/2; \quad (1) \\ s_a s_a - 1 = 0,$$

где  $s_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ) – координаты единичного изовектора  $\mathbf{S}(s_1, s_2, s_3)$ , эволюционирующего

*Муминов Х. Х., Шокиров Ф. Ш.* Динамика взаимодействия двумерных доменных стенок с топологическим вихрем // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 2. С. 5–15.

в изотопическом пространстве блоховской сферы  $S^2$  (см., например, рис. 1 для случая 180-градусной доменной стенки).

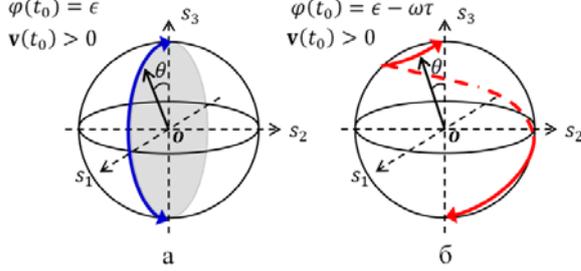


Рис. 1. Динамика единичного изовектора  $\mathbf{S}(s_1, s_2, s_3)$  180-градусной движущейся доменной стенки в изопространстве сферы  $S^2$  при:  $a - \varphi = 0$ ;  $b - \varphi \neq 0$

Рассмотрим процессы взаимодействия топологических вихрей (солитонов) белавин-поляковского типа [4] модели (1)

$$\begin{aligned} \operatorname{tg} \frac{\theta}{2} &= \left( \frac{R}{r} \right)^{Q_i}, \\ Q_i &= \chi^{-1}(\varphi + \omega\tau), \\ \chi &= \cos^{-1} \frac{x}{r} = \sin^{-1} \frac{y}{r} \end{aligned} \quad (2)$$

с известными решениями двумерного уравнения синус-Гордона в виде доменных стенок

$$\begin{aligned} \operatorname{tg} \frac{\theta}{2} &= \\ &= \exp \left[ B_1 \left( \frac{w}{k_1} x - \frac{w}{k_1} x_0 \right) + B_2 \left( \frac{w}{k_2} y - \frac{w}{k_2} y_0 \right) \right], \\ \varphi(x, y, t) &= \epsilon - \omega\tau, \quad \epsilon = \frac{\pi n}{2}, \quad n = 0, 1, 2, \dots, \end{aligned} \quad (3)$$

где  $R$  – радиус локализации топологического вихря (3),  $Q_i$  – топологический заряд (индекс Кронекера [5]),  $\theta(x, y, t)$  и  $\varphi(x, y, t)$  – углы Эйлера. Решение (3) при  $\epsilon = 0, \pi$  и  $\epsilon = \pm\pi/2$  описывает соответственно динамику нееловских и блоховских доменных стенок. Уравнения Лагранжа – Эйлера для (1) в параметризации  $\theta(x, y, t)$  и  $\varphi(x, y, t)$  принимают следующий вид:

$$\begin{aligned} 2\partial_\mu \partial^\mu \theta + \sin(2\theta)(1 - \partial_\mu \varphi \partial^\mu \varphi) &= 0, \\ 2\cos\theta \partial_\mu \varphi \partial^\mu \varphi + \sin\theta \partial_\mu \partial^\mu \varphi &= 0. \end{aligned}$$

Данные уравнения в меридианном сечении  $\varphi(x, y, t) = 0$  (см. рис. 1, а) изопространства блоховской сферы  $S^2 \in \mathbb{R}^3$  сводятся [6; 7] к вполне интегрируемой модели синус-Гордона следующего вида:

$$2\Box\theta = -\sin(2\theta). \quad (4)$$

В данном случае переменные  $\theta(x, y, t)$  и  $\varphi(x, y, t)$  связаны с изоспиновыми параметрами  $O(3)$  нелинейной сигма-модели единичным изовектором  $\mathbf{S}(s_1, s_2, s_3)$  А3-поля следующим образом:

$$\mathbf{S}(s_1, s_2, s_3) = (\sin\theta \cos\varphi, \sin\theta \sin\varphi, \cos\theta), \quad (5.1)$$

$$z = x + iy = \frac{s_1 + is_2}{1 \pm s_3} = \exp[i\varphi] \operatorname{tg} \frac{\theta}{2}. \quad (5.2)$$

Отметим, что 180-градусные доменные стенки вида (3) ( $\pi$ -кинк) являются точными решениями исследуемой  $O(3)$  нелинейной сигма-модели (1) и соответствующей ей в частном случае (при  $\varphi(x, y, t) = 0$ ) модели (4). Двумерные топологические вихри (2) были исследованы нами ранее (см., например, [7; 8]), получены модели их дальнедействующих взаимодействий, столкновений и отражений, а также модели их поэтапной аннигиляции. В работе [6] было проведено численное исследование процессов двухсолитонных взаимодействий доменных стенок (3) нееловского типа в рамках модели (1), где были получены модели упругих столкновений, а также дальнедействующие и осциллирующие модели. В работе [9] проведено численное исследование процессов двухсолитонных взаимодействий топологических решений вида (2) и (3) (при  $\epsilon = 0$ ), где получены модели с поэтапным распадом топологических вихрей (2) на локализованные возмущения, обладающие половинными ( $Q_i = 1/2$ ) значениями топологического заряда (индекса Кронекера) (рис. 2).

Аналогичные процессы наблюдаются в случае двухсолитонного взаимодействия

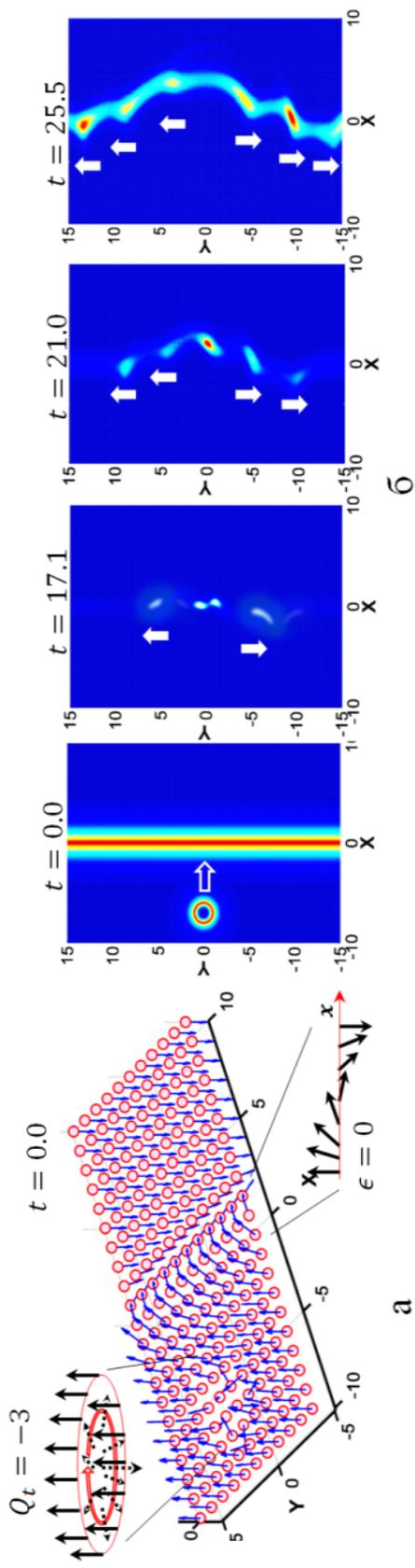


Рис. 2. Взаимодействие движущегося ( $\mathbf{v}(t_0) \approx 0.447$ ) топологического вихря (2) ( $Q_t = 3$ ) с неподвижной доменной стенкой (3) неэловского типа ( $\epsilon = 0$ ): *a* – изоспиновая структура при  $t = 0$ ; *б* – плотность энергии ( $DH$ ) процесса взаимодействия при  $t \in [0.0, 25.5]$

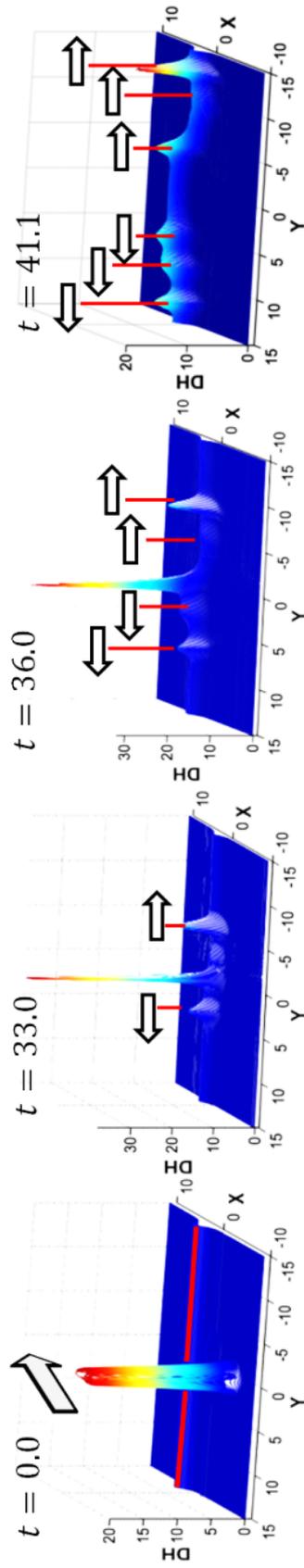


Рис. 3. Плотность энергии ( $DH$ ) процесса взаимодействия топологического вихря (2) при  $Q_t = -3$ , движущегося со скоростью  $\mathbf{v}(t_0) \approx 0.196$  с неподвижной доменной стенкой (3) при  $\epsilon = -\pi/2$

вихрей (2) с доменными стенками блоховского типа (рис. 3).

Таким образом, общим результатом двухсолитонных взаимодействий вихрей (2) с 180-градусными доменными стенками (3) конфигурации

$$\left(\frac{R}{r}\right)^{Q_i} \rightarrow \leftarrow \exp \left[ B_1 \left( \frac{w}{k_1} x - \frac{w}{k_1} x_0 \right) + B_2 \left( \frac{w}{k_2} y - \frac{w}{k_2} y_0 \right) \right] \quad (6)$$

является поэтапный распад топологического вихря на  $2Q_i$  локализованных возмущений с половинными значениями топологического заряда ( $Q_i = 1/2$ ), движущихся вдоль плоскости доменной стенки со скоростью  $c = 1$ . При этом доменная стенка сохраняет устойчивость [7; 9] независимо от динамических параметров конфигурации (6).

В отличие от эволюционных моделей, полученных при двухсолитонном взаимодействии вида (6) качественно новые результаты были получены в настоящей работе при исследовании трехсолитонных взаимодействий топологических решений (2) и (3) следующей конфигурации:

$$\exp \left[ B_1 \left( \frac{w}{k_1} x - \frac{w}{k_1} x_0 \right) + B_2 \left( \frac{w}{k_2} y - \frac{w}{k_2} y_0 \right) \right] \rightarrow \left(\frac{R}{r}\right)^{Q_i} \leftarrow \exp \left[ B_1 \left( -\frac{w}{k_1} x + \frac{w}{k_1} x_0 \right) + B_2 \left( -\frac{w}{k_2} y + \frac{w}{k_2} y_0 \right) \right].$$

Во всех экспериментах конфигурации (6) топологические вихри (2) взаимодействуют с 180-градусной областью перехода между локальными вакуумными состояниями  $\theta(x, y, t) = 0, \pi$  и  $\theta(x, y, t) = \pm\pi/2$ :

$$S(\uparrow) \leftrightarrow S(\downarrow).$$

В этом случае определенный интерес представляет рассмотрение процессов взаимодействия топологических вихрей (2) с 360-градусными доменными стенками ( $2\pi$ -кинк). В экспериментах настоящей работы две 180-градусные ( $\pi$ -кинк  $\rightarrow \leftarrow$   $\pi$ -антикинк) доменные стенки при непосредственном столкновении с вихрем (2) могут создать действие

360-градусной топологической структуры ( $2\pi$ -кинк).

Численные модели построены на основе методов теории конечных разностных схем с использованием свойств стереографической проекции, с учетом теоретико-групповых особенностей конструкций класса  $O(N)$  нелинейных сигма-моделей теории поля. По периметру двумерной области моделирования  $L(x, y)$  установлены специально разработанные граничные условия [6–9], поглощающие линейные волны возмущений, излучаемые взаимодействующими солитонными полями. Разработан программный модуль для проведения комплексного анализа эволюции многосолитонных взаимодействующих решений нелинейных сигма-моделей, с учетом их групповых особенностей в двумерном псевдоевклидовом пространстве [6–9]. Использована трехслойная разностная схема второго порядка точности  $O(r^2 + h^2)$  на пятиточечном шаблоне с весами явного типа [10]. Аппроксимация проведена на прямоугольной сетке  $L(x, y) = 2.5E^3 \times 2E^3$ , в кубе  $(h_{xy}, t_\tau)$ :  $\tau_{\max}(2E^{+4})$ . Устойчивость разностной схемы удовлетворяет требованиям для гиперболических систем уравнений:  $\tau \leq \min(h/|\Delta|_{\max})$ . Для численной схемы применен алгоритм, где использованы свойства стереографической проекции, позволяющие осуществление взаимно однозначной проекции (компактификации  $S^2 - R_{comp}^2$ ) всех точек комплексной плоскости  $z$  (5.2) (включая  $(x, y) = \infty$ ) и сферы  $S^2$ :  $s_i s_i = 1$ , ( $i = 1, 2, 3$ ). С более подробным описанием алгоритма и численной схемы можно ознакомиться в [7].

### Взаимодействие топологического вихря с разнополярными доменными стенками

*Взаимодействие вихря с блоховскими доменными стенками.* Рассмотрим модель трехсолитонных взаимодействий топологических вихрей (2) с  $Q_i = 1, \dots, 4$  и блоховских разнополярных 180-градусных доменных сте-

нок ( $\pi$ -кинк) вида (3) следующей конфигурации:

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_{K\left(+\frac{\pi}{2}\right)+V+Ak\left(-\frac{\pi}{2}\right)} &\Rightarrow \\ &\Rightarrow \mathbf{S}_{Kink}\left(+\frac{\pi}{2}\right) \rightarrow \mathbf{S}_{Vortex} \leftarrow \mathbf{S}_{Antikink}\left(-\frac{\pi}{2}\right), \end{aligned} \quad (7)$$

где полярность определяется направлением раскручивания вектора намагниченности в плоскости доменных стенок. В случае  $Q_t = 3$  конфигурация (7) имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_{K\left(+\frac{\pi}{2}\right)+V+Ak\left(-\frac{\pi}{2}\right)} &= -\Lambda_3 \left( \xi_1 \cos \tau + \right. \\ &\left. + \xi_2 \sin \tau, \xi_2 \cos \tau - \xi_1 \sin \tau, 2^{-1} (1 - r^6) \right), \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \Lambda_3 &= 2(1 + r^6)^{-1}, \quad \xi_1(x, y) = x(x^2 - 3y^2), \\ \xi_2(x, y) &= y(3x^2 - y^2), \end{aligned}$$

где

$$\mathbf{S}_{K/Ak}\left(\pm \frac{\pi}{2}\right) = (1 + e^{2x})^{-1} (0, \pm 2e^x, 1 - e^{2x}),$$

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_{Vortex} &= \Lambda_3 \left[ \sin(2tg^{-1}R^3) \cos(3\chi - \tau), \right. \\ &\left. \sin(2tg^{-1}R^3) \sin(3\chi - \tau), \cos(2tg^{-1}R^3) \right]. \end{aligned}$$

На рис. 4 приведена иллюстрация исходного состояния ( $t = 0$ ) численной модели, соответствующей трехсолитонной конфигурации (8). Плотность энергии ( $DH$ ) топологического вихря (2) локализована в кольцеобразной форме (см. рис. 4, а). Изоспиновая структура поля (8) в виде проекций единичного изовектора (5.1) на комплексную плоскость (5.2), а также в двумерном пространстве дискретной решетки приведена соответственно на рис. 4, б и 4, в. Проекция изоспиновой структуры топологического вихря (2) на плоскость  $L(x, y)$  для значений  $Q_t = 1, \dots, 4$  приведена на рис. 4, г.

На рис. 5 приведены результаты численного моделирования эволюции пробных функций конфигурации (7), где движущиеся со скоростью  $v(t_0) \approx \pm 0.0995$  в противоположных  $\pm x$ -направлениях блоховские доменные стенки ( $\epsilon = \pm \pi/2$ ) взаимодействуют с неподвижным топологическим вихрем при

$Q_t = 1, \dots, 4$ . В процессе взаимодействия (см. рис. 5, а, при  $t \approx 60.0$ ) происходит распад топологического вихря ( $c Q_t = 1$ ) на 2 локализованных возмущения, каждое из которых обладает половинным значением топологического заряда  $Q_t = 1/2$ , аналогично случаю двухсолитонных взаимодействий (6). Но в отличие от результатов, полученных для (6), в данном случае наблюдается также процесс аннигиляции доменных стенок. На месте распада топологического вихря ( $x_0, y_0$ ) происходит «разрыв» поля каждой из доменных стенок с последующим попарным кинк + антикинк объединением («замыкание»). При этом образовавшиеся локализованные возмущения действуют в качестве переходного поля ( $\theta = \pm \pi/2$ ). Далее наблюдается процесс распространения локализованных возмущений в  $\pm y$ -направлениях со скоростью  $c = 1$  (см., например, рис. 5, а при  $t > 58.0$ ), сопровождающийся полной аннигиляцией доменных стенок.

Аналогичные процессы аннигиляции доменных стенок (3) системы (7) наблюдаются также в случае их взаимодействия с топологическими вихрями, обладающими более высокими значениями индекса Кронекера:  $Q_t = 2, 3, 4$  (см. рис. 5, б–г). Но в данных экспериментах в отличие от предыдущего случая, описанного на рис. 5, а (для  $Q_t = 1$ ), топологические вихри (2) при взаимодействии распадаются на  $n = Q_t > 1$  локализованных возмущений, каждое из которых обладает единичным значением  $Q_t$ . При этом одно из локализованных возмущений при взаимодействии солитонных полей (2) и (3) поглощается аннигилирующими доменными стенками. Остальные  $n - 1$  локализованных возмущений эволюционируют, сохраняя топологическую устойчивость вплоть до конца времени моделирования (см. рис. 5, б–г). Таким образом, общими свойствами трехсолитонных моделей конфигурации (7) при  $\epsilon = \pm \pi/2$  являются аннигиляция доменных стенок и распад топологических вихрей на локализованные возмущения с единичными значениями топологического заряда:  $Q_t = 1$ .

*Взаимодействие вихря с неловскими доменными стенками.* На втором этапе экспериментов данной части работы были построены модели трехсолитонных взаимодействий следующей конфигурации:

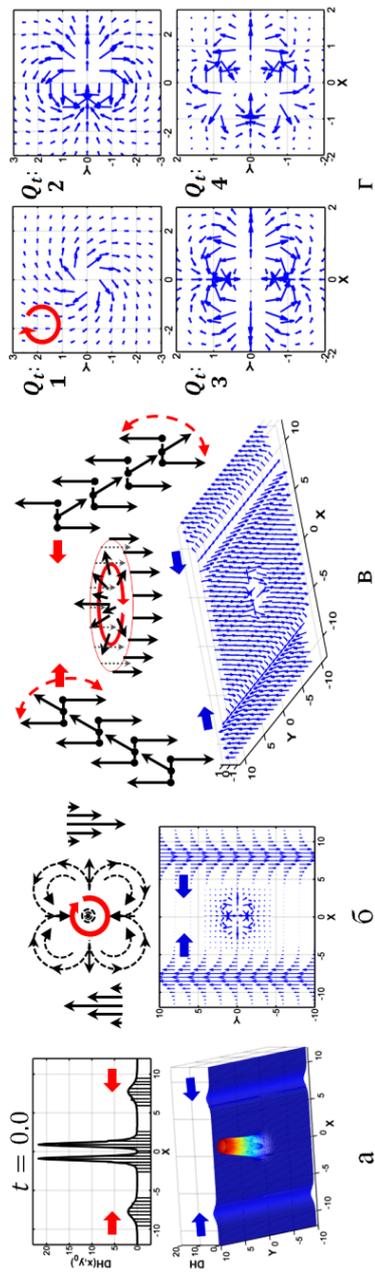


Рис. 4. Трехсолитонное поле конфигурации (7) в случае  $Q_t = 3$ , при  $t = 0$  (a–в); проекция  $\mathbf{S}(S_1, S_2, S_3)$  решения (2) на  $L(x, y)$  для  $Q_t = 1, \dots, 4$  (з)

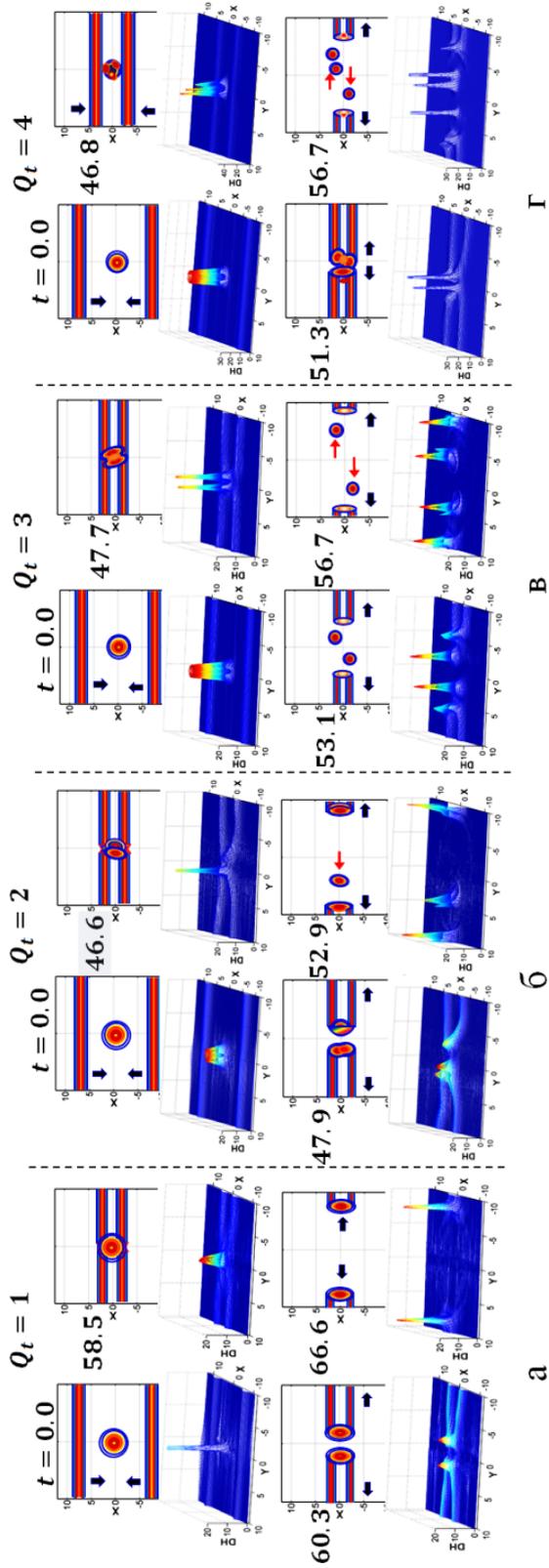


Рис. 5. Эволюция плотности энергии ( $DH$ ) и ее контурная проекция для трехсолитонных взаимодействий конфигурации (7): а – при  $Q_t = 1$ ; б – при  $Q_t = 2$ ; в – при  $Q_t = 3$ ; г – при  $Q_t = 4$ . Общее время моделирования  $t \in [0, 60]$

$$\mathbf{S}_{K(0)+V+Ak(\pi)} = \mathbf{S}_{Kink}(0) \rightarrow \mathbf{S}_{Vortex} \leftarrow \mathbf{S}_{Antikink}(\pi). \quad (9)$$

Результаты, полученные при моделировании эволюции взаимодействующих полей конфигурации (9) оказались полностью идентичными предыдущей серии экспериментов: во всех моделях происходят аннигиляция доменных стенок и распад вихрей на единичные локализованные возмущения (с  $Q_i = 1/2$ ) аналогичным для системы (7) способом.

### Взаимодействие топологического вихря с однополярными доменными стенками

*Взаимодействие вихря с блоховскими доменными стенками.* Рассмотрим результаты численных экспериментов следующей конфигурации:

$$\mathbf{S}_{K(\frac{\pi}{2})+V+Ak(\frac{\pi}{2})} = \mathbf{S}_{Kink}\left(\frac{\pi}{2}\right) \rightarrow \mathbf{S}_{Vortex} \leftarrow \mathbf{S}_{Antikink}\left(\frac{\pi}{2}\right), \quad (10)$$

В этом случае начальное условие, соответствующее (10), состоит из следующих полей:

$$\begin{aligned} \theta_V(x, y, t) &= 2\text{tg}^{-1}\left(\frac{R}{r}\right)^{Q_i}, \quad \varphi_V(x, y, t) = Q_i\chi - \tau, \\ \theta_{K/Ak}(x, y, t) &= 2\text{tg}^{-1}\left(e^{\pm x}\right), \\ \varphi_{K/Ak}(x, y, t) &= \pi/2, \end{aligned}$$

где  $Q_i = 1, \dots, 4$ ,  $R$  – радиус локализации топологического вихря ( $r = 1$ ).

Численные эксперименты показали, что в данном случае процесс распада топологических вихрей и последующая аннигиляция доменных стенок происходят без поглощения образовавшихся локализованных возмущений. Локализованные возмущения, образовавшиеся вследствие распада топологического вихря (2), обладают единичными значениями индекса Кронекера:  $Q_i = 1$ . На рис. 6 приведены иллюстрации результатов проведенных экспериментов конфигурации (10) для движущихся ( $\mathbf{v}(t_0) \approx \pm 0.0995$ ) в противоположных  $\pm x$ -направлениях 180-градусных однополярных блоховских доменных

стенок ( $\epsilon = \pi/2$ ) и неподвижных топологических вихрей с  $Q_i = 1, \dots, 4$ .

При взаимодействии топологических солитонов (2) и (3) происходит вышеописанный процесс разрыва и объединения доменных стенок с последующей их аннигиляцией. При этом вихрь, обладающий топологическим зарядом  $Q_i = 1$ , не поглощается аннигилирующими доменными стенками. Аналогичные процессы наблюдаются для всех значений  $Q_i = 1, \dots, 4$  (см. рис. 6, б–г).

*Взаимодействие вихря с нееловскими доменными стенками.* Рассмотрим результаты экспериментов следующей конфигурации:

$$\mathbf{S}_{K(0)+V+Ak(0)} = \mathbf{S}_{Kink}(0) \rightarrow \mathbf{S}_{Vortex} \leftarrow \mathbf{S}_{Antikink}(0). \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \theta_V(x, y, t) &= 2\text{tg}^{-1}\left(\frac{R}{r}\right)^{Q_i}, \quad \varphi_V(x, y, t) = Q_i\chi - \tau, \\ \theta_{K/Ak}(x, y, t) &= 2\text{tg}^{-1}\left(e^{\pm x}\right), \quad \varphi_{K/Ak}(x, y, t) = 0. \end{aligned}$$

Получены модели аналогичные по основным параметрам процессам взаимодействий, рассмотренным в экспериментах предыдущей части (см., например, рис. 5). Единственное отличие новых моделей заключается в том, что при объединении и аннигиляции доменных стенок происходит поглощение пары локализованных возмущений, обладающих единичными значениями топологического заряда:  $Q_i = 1$ . На рис. 7 приведены результаты проведенных экспериментов конфигурации (11) для движущихся ( $\mathbf{v}(t_0) \approx \pm 0.0995$ ) в противоположных  $\pm x$ -направлениях 180-градусных нееловских доменных стенок ( $\epsilon = 0$ ) и неподвижных топологических вихрей с  $Q_i = 2, 3, 4$ .

На рис. 8, а–в приведены иллюстрации исходного состояния ( $t = 0$ ) численной модели, соответствующей трехсолитонной конфигурации (11) для  $Q_i = 1$ . В данном случае плотность энергии ( $DH$ ) топологического вихря (2) локализована в центре (см. рис. 4, а) области моделирования  $L(x, y)$ . Изоспиновая структура поля (11) в виде проекций единичного изовектора (5.1) на комплексную плоскость (5.2), а также в двумерном пространстве дискретной решетки приведена соответственно на рис. 8, б и в.

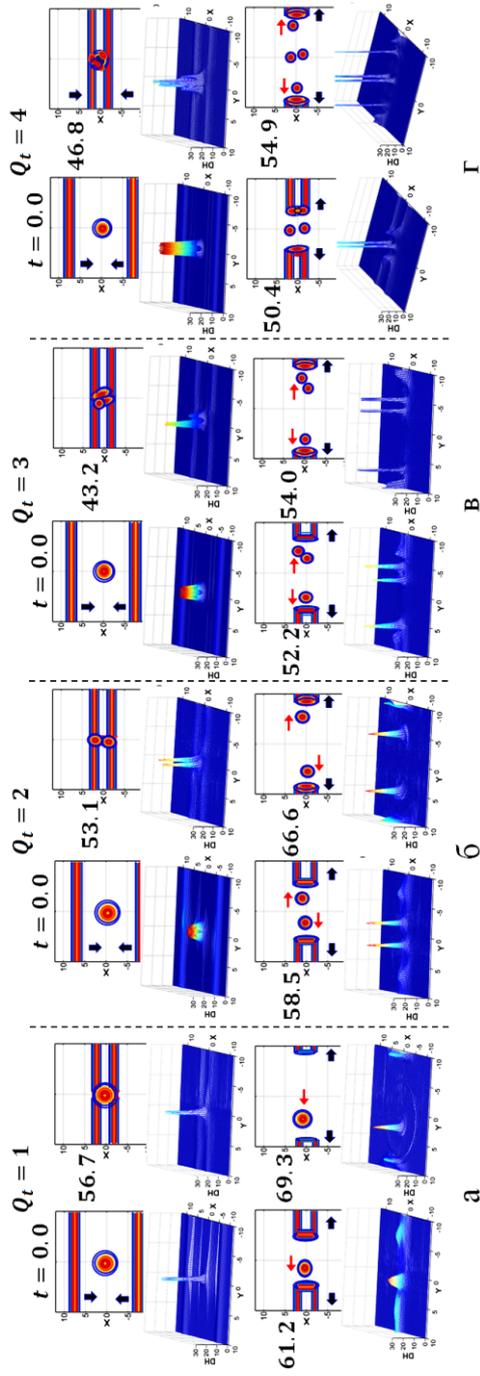


Рис. 6. Эволюция плотности энергии ( $DH$ ) и ее контурная проекция для трехсолитонных взаимодействий конфигурации (10):  
 $a$  – при  $Q_t = 1$ ;  $b$  – при  $Q_t = 2$ ;  $v$  – при  $Q_t = 3$ ;  $z$  – при  $Q_t = 4$ . Общее время моделирования  $t \in [0, 70]$

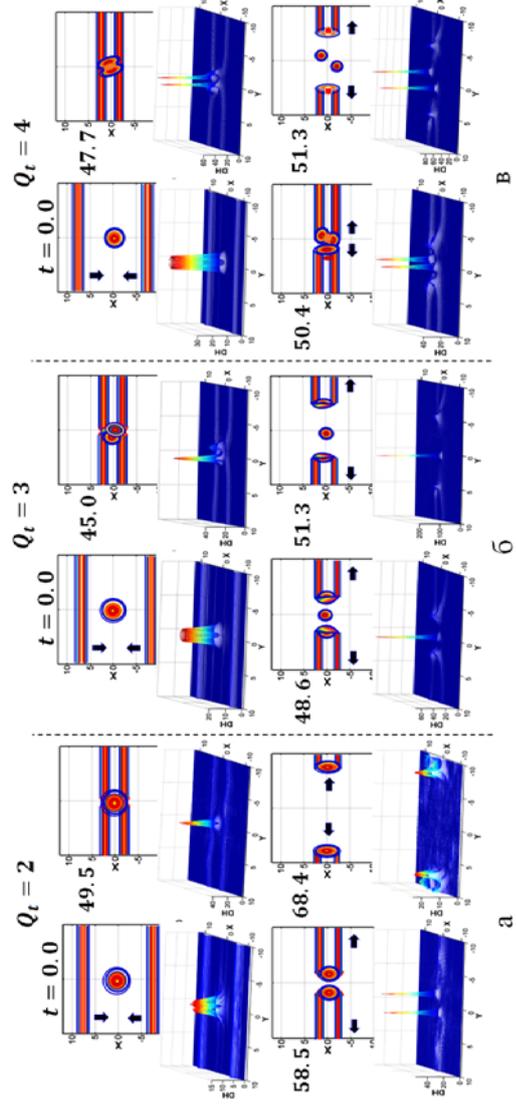


Рис. 7. Эволюция плотности энергии ( $DH$ ) и ее контурная проекция для трехсолитонных взаимодействий конфигурации (11):  
 $a$  – при  $Q_t = 2$ ;  $b$  – при  $Q_t = 3$ ;  $v$  – при  $Q_t = 4$ . Общее время моделирования  $t \in [0, 70]$

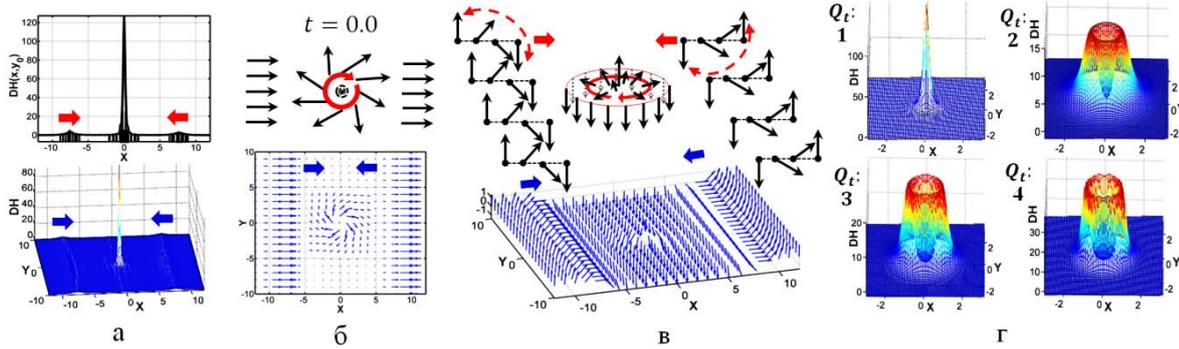


Рис. 8. Трехсолитонное поле конфигурации (11) в случае  $Q_t = 1$  при  $t = 0$  (а–в); плотность энергии ( $DH$ ) решения (2) для  $Q_t = 1, \dots, 4$  (г)

Иллюстрация плотности энергии ( $DH$ ) топологического вихря (2) для значений  $Q_t = 1, \dots, 4$  приведена на рис. 8, г.

Заметим, что аналогичные результаты экспериментов по конфигурациям (7), (9)–(11) были получены также для их соответствующих симметричных форм следующих видов:

$$\begin{aligned} & \mathbf{S}_{K\left(\frac{\pi}{2}\right)+V+Ak\left(\frac{\pi}{2}\right)}, \mathbf{S}_{K(\pi)+V+Ak(0)}, \\ & \mathbf{S}_{K\left(\frac{\pi}{2}\right)+V+Ak\left(\frac{\pi}{2}\right)}, \mathbf{S}_{K(\pi)+V+Ak(\pi)}. \end{aligned}$$

Также необходимо отметить, что при моделировании взаимодействующих топологических вихрей со значениями индекса Кронекера  $Q_t > 4$  происходит разрушение численной схемы вследствие высоких значений градиента поля в кольцеобразной концентрации плотности их энергии.

## Заключение

Исследования, представленные в настоящей работе, показали, что в (2+1)-мерной  $O(3)$  нелинейной сигма-модели трехсолитонные взаимодействия 180-градусных доменных стенок ( $\pi$ -кинков) с топологическим вихрем белавин-поляковского типа приводят к аннигиляции доменных стенок и полному распаду вихря на локализованные возмущения. В частности, определены следующие свойства процессов трехсолитонного взаимодействия типа «кинк  $\rightarrow$  вихрь  $\leftarrow$  антикинк»:

- во всех экспериментах происходит аннигиляция доменных стенок (в отличие от двухсолитонных взаимодействий «вихрь-кинк», где доменные стенки сохраняют устойчивость [7; 9]);

- в зависимости от типа межфазных границ при распаде топологического вихря происходит поглощение определенной части его энергии аннигилирующими доменными стенками (в отличие от двухсолитонных взаимодействий «вихрь-кинк», где топологический вихрь полностью распадается вдоль устойчивой доменной стенки [7; 9]);

- во всех экспериментах топологические вихри распадаются на устойчивые локализованные возмущения с единичными индексами Кронекера:  $Q_t = 1$  (в отличие от двухсолитонных взаимодействий «вихрь-вихрь», где образовавшиеся локализованные возмущения обладают произвольными значениями  $Q_t$  [7–9]);

- при взаимодействии топологического вихря с разнополярными доменными стенками нееловского ( $\epsilon = 0, \pi$ ) и блоховского ( $\epsilon = \pm\pi/2$ ) типов аннигиляция доменных стенок происходит с поглощением двух локализованных возмущений, обладающих половинными значениями индекса Кронекера:  $Q_t = 1/2$ ;

- в случае взаимодействия вихря с однополярными доменными стенками нееловского типа ( $\epsilon = 0 / \epsilon = \pi$ ) аннигиляция доменных стенок происходит с поглощением двух локализованных возмущений, обладающих единичными значениями индекса Кронекера:  $Q_t = 1$ ;

- в случае взаимодействия вихря с однополярными доменными стенками блоховского типа ( $\epsilon = \pi/2$  /  $\epsilon = -\pi/2$ ) аннигиляция доменных стенок происходит без поглощения локализованных возмущений, что является совершенно новым результатом в наших экспериментах.

Разработаны численные схемы и комплексы компьютерных программ для исследования динамики взаимодействия системы трехсолитонных взаимодействий, состоящей из топологического вихря и двух 180-градусных доменных стенок в рамках (2+1)-мерной анизотропной O(3) нелинейной сигма-модели. Достоверность полученных моделей обеспечивается положительными результатами апробации используемых методов для известных задач (солитонных решений уравнения синус-Гордона), высокой точностью сохранения интеграла энергии системы взаимодействующих солитонов и сопоставления построенных моделей с результатами других работ, а также с практическими экспериментами (см., например, [11]).

### Список литературы

1. Поляков А. М. Калибровочные поля и струны. Ижевск: ИД «Удмуртский университет», 1999. 312 с.
2. Ицксон К., Зюбер Ж.-Б. Квантовая теория поля: Пер. с англ. М.: Мир, 1984. Т. 2. 400 с.
3. Цвеллик А. М. Квантовая теория поля в физике конденсированного состояния: Пер. с англ. М.: Физматлит, 2004. 320 с.

4. Белавин А. А., Поляков А. М. Метастабильные состояния двумерного изотропного ферромагнетика // ЖЭТФ. 1975. Т. 22, вып. 10. С. 503–506.

5. Лере Ж. Дифференциальное и интегральное исчисления на комплексном аналитическом многообразии: Пер. с фр. М.: Иностран. лит., 1961. 137 с.

6. Муминов Х. Х., Шокиров Ф. Ш. Динамика взаимодействия доменных стенок в (2+1)-мерной O(3) нелинейной сигма-модели // Изв. АН РТ. 2015. Т. 4, вып. 161. С. 57–64.

7. Муминов Х. Х., Шокиров Ф. Ш. Математическое моделирование нелинейных динамических систем квантовой теории поля. Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2017. 375 с.

8. Муминов Х. Х., Шокиров Ф. Ш. Взаимодействие и распад двумерных топологических солитонов O(3) векторной нелинейной сигма-модели // ДАН РТ. 2011. Т. 54, вып. 2. С. 110–114.

9. Муминов Х. Х., Шокиров Ф. Ш. Динамика взаимодействия топологических вихрей с доменной стенкой в (2+1)-мерной нелинейной сигма-модели // ДАН РТ. 2015. Т. 58, вып. 4. С. 302–308.

10. Самарский А. А. Теория разностных схем. М.: Наука, 1977. 657 с.

11. Kudryavtsev A., Piette B. M. A. G., Zakrzewsky W. J. Skyrmions and domain walls in (2+1) dimensions // Nonlinearity. 1998. Vol. 11. No 4. P. 783–796.

Материал поступил в редколлегию 13.10.2017

**Kh. Kh. Muminov, F. Sh. Shokirov**

*S. U. Umarov Physical-Technical Institute of AS RT  
299/1 Aini Ave., Dushanbe, 734063, Tajikistan*

*khikmat@inbox.ru, shokirov@rambler.ru*

### DYNAMICS OF THE INTERACTION OF TWO-DIMENSIONAL DOMAIN WALLS WITH A TOPOLOGICAL VORTEX

A numerical investigation of the dynamics of three-soliton interactions of 180-degree domain walls with a topological vortex (soliton) of the Belavin-Polyakov type in the phase space of a (2+1)-dimensional anisotropic O(3) invariant nonlinear sigma model is carried out. Models of interaction of topological structures of the kink-vortex-antikink type are obtained, where the annihilation of domain walls and complete decay of topological vortices onto localized perturbations that have a unit value of the Kronecker index are observed. It is established that in the case of the opposite di-

rection of the field, the annihilating domain walls absorb some of the energy of the topological vortex equivalent to the unit value of the Kronecker index. In the case of domain walls of the same polarity, depending on the Bloch or Neel structure of the interphase boundaries, the process of their annihilation occurs, respectively, without absorbing the energy of the topological vortex or with energy absorption equivalent to the value of two units of the Kronecker index. Based on the methods of the theory of finite difference schemes and the application of the properties of stereographic projection, a complex program module is proposed that implements an algorithm for the numerical calculation of the evolution of three-soliton interactions in a stratified space.

*Keywords:* three-soliton interaction, topological vortex, domain wall, nonlinear sigma-model, numerical simulation, stratified space.

*For citation:*

Muminov Kh. Kh., Shokirov F. Sh. Dynamics of the Interaction of Two-Dimensional Domain Walls with a Topological Vortex. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 5–15. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-5-15

УДК 621.311

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-16-22

Д. В. Кудашкин<sup>1</sup>, В. В. Саломатов<sup>1,2</sup>, А. В. Саломатов<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Новосибирский государственный университет  
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия

<sup>2</sup> Институт теплофизики им. С. С. Кутателадзе СО РАН  
пр. Акад. Лаврентьева, 1, Новосибирск, 630090, Россия

<sup>3</sup> ОАО «АК Транснефть»  
ул. Б. Полянка, 5, Москва, 107996, Россия

*kudashkindmitrii@yandex.ru, salomatov.vv@mail.ru, salomatov@ak.transneft.ru*

## УСТАНОВИВШИЙСЯ ТЕПЛОВЫЙ РЕЖИМ ПОТОКА ЖИДКОСТИ В КРУГЛОМ КАНАЛЕ В УСЛОВИЯХ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОГО НАГРЕВА

С использованием метода тепловых балансов построены теоретические зависимости по расчету установившегося теплового режима круглого канала с движущимся несжимаемым теплоносителем в условиях диэлектрического нагрева. Найдены такие локальные параметры по длине канала, как температура теплоносителя, внутренняя и наружная температура стенки, а также их максимальные значения и координаты местоположения. По этим данным оценивается работоспособность технологического канала при микроволновом воздействии.

*Ключевые слова:* тепловой баланс, диэлектрический нагрев, круглый канал, коэффициент теплопроводности, коэффициент теплоотдачи.

### Введение

Сфера применения СВЧ-излучения в науке и технике постоянно расширяется. Превалируют процессы, связанные с микроволновой обработкой разных материалов, с сушкой сельскохозяйственной продукции, с прогревом нефти и нефтепродуктов для снижения вязкости при их транспортировке по трубопроводам, с обогащением углей и т. д. Часть из них подробно освещена в известных монографиях А. Н. Диденко [1; 2], Э. Окресса [3] и др.

Весьма перспективно использование электромагнитной энергии сверхвысокочастотного диапазона в инновационных и критических технологиях. Здесь следует выделить, прежде всего, воздействие СВЧ-излучения в области органического синтеза, когда скорости ряда химических реакций

ускоряются в десятки и сотни раз. Примечателен эффект повышения прочности капроновых канатов, прошедших кратковременную микроволновую обработку, более чем на порядок. Целесообразно применение СВЧ при создании наноматериалов, что позволяет свести к минимуму объем примесей в нанопорошках. Актуально разрушение с помощью СВЧ-излучения парафиновых пробок при транспортировке нефтепродуктов.

В настоящей работе основное внимание сосредоточено на изучении тепловых режимов технологических каналов с движением рабочей среды. Рассматривается диэлектрический нагрев несжимаемой жидкости в круглом канале. В задаче приняты следующие допущения. Теплофизические и электрофизические свойства материалов данного канала постоянны. Это позволило разделить связанную систему на две незави-

*Кудашкин Д. В., Саломатов В. В., Саломатов А. В. Установившийся тепловой режим потока жидкости в круглом канале в условиях диэлектрического нагрева // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 2. С. 16–22.*

симые. Электрофизическая часть задачи сводится к выражению для внутреннего источника тепла от поглощения СВЧ-энергии в виде закона Бугера [4]. Схема теплофизической части задачи для установившегося теплового режима круглого канала приведена на рис. 1. Несжимаемая жидкость с расходом  $G_{ж}$  (кг/с) и теплоемкостью  $C_{ж}$  (кДж/кг К) втекает в круглый канал внутренним диаметром  $d_в$  и внешнем  $d_н$  (м) с температурой  $T_{ж}^{вх}$  (К). Движущийся поток взаимодействует с внутренней поверхностью канала по закону конвекции Ньютона с коэффициентом теплоотдачи  $\alpha$  (Вт/(м<sup>2</sup>К)). Внешняя поверхность трубы теплоизолирована.

**I режим.** Стенка канала выполнена из диэлектрического материала. Найти характер изменения температур жидкости, внутренней и внешней стенки трубы по длине канала.

1. Найдем изменение температуры жидкости по длине канала.

Составим элементарный баланс подвода тепла за счет поглощения СВЧ-энергии и отвода тепла жидкостью на участке трубы  $dx$ :

$$q_{\nu_01} e^{-\kappa_1 x} \frac{\pi}{4} (d_n^2 - d_v^2) dx = C_{ж} G_{ж} dT_{ж}.$$

Разделяя переменные

$$dT_{ж} = \frac{q_{\nu_01} e^{-\kappa_1 x} \pi (d_n^2 - d_v^2)}{4 C_{ж} G_{ж}} dx \quad (1)$$

и интегрируя (1) по  $T_{ж}$  от  $T_{ж}^{вх}$  до текущего значения  $T_{ж}(x)$  и по  $x$  от нуля до локального  $x$ , получим

$$T_{ж}(x) = T_{ж}^{вх} + \frac{q_{\nu_01} \pi (d_n^2 - d_v^2)}{4 C_{ж} G_{ж} \kappa_1} (1 - e^{-\kappa_1 x}). \quad (2)$$

Важным расчетным параметром является температура теплоносителя на выходе из канала длиной  $l$  (м):

$$T_{ж}^{вых} = T_{ж}^{вх} + \frac{q_{\nu_01} \pi (d_n^2 - d_v^2)}{4 C_{ж} G_{ж} \kappa_1} (1 - e^{-\kappa_1 l}).$$

Эта величина жестко регламентирована [5].

2. Найдем изменение температуры внутренней стенки трубы  $T_в(x)$  по длине канала.

Запишем элементарный баланс подвода тепла за счет микроволнового поглощения энергии и отвода жидкости конвективным способом на участке  $dx$ :

$$\begin{aligned} q_{\nu_01} e^{-\kappa_1 x} \frac{\pi}{4} (d_n^2 - d_v^2) dx = \\ = \alpha [T_в(x) - T_{ж}(x)] \pi d_в dx. \end{aligned}$$

В результате искомая температура внутренней стенки трубы  $T_в(x)$  примет вид

$$\begin{aligned} T_в(x) = T_{ж}^{вх} + \frac{q_{\nu_01} \pi (d_n^2 - d_v^2)}{4 C_{ж} G_{ж} \kappa_1} (1 - e^{-\kappa_1 x}) + \\ + \frac{q_{\nu_01} (d_n^2 - d_v^2) e^{-\kappa_1 x}}{4 \alpha d_в}. \end{aligned} \quad (3)$$

3. Температура наружной стенки канала находится интегрированием следующего элементарного баланса тепла. Подвод тепла осуществляется за счет поглощения СВЧ-излучения. Отвод реализуется механизмом

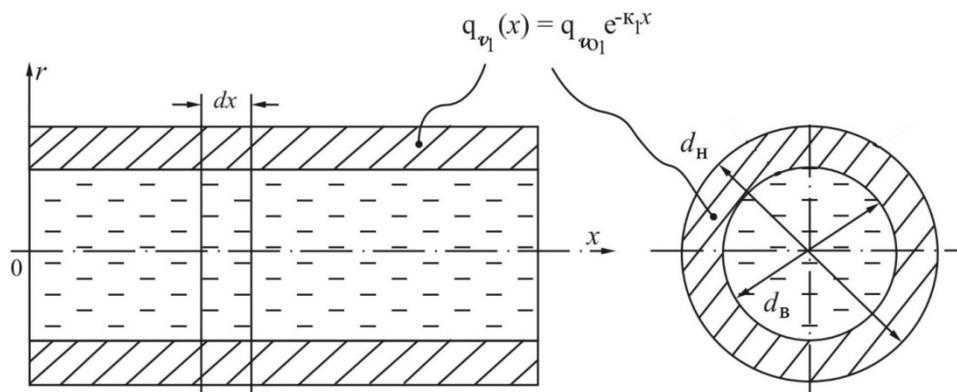


Рис. 1. Микроволновой нагрев круглой трубы, охлаждаемой несжимаемой жидкостью

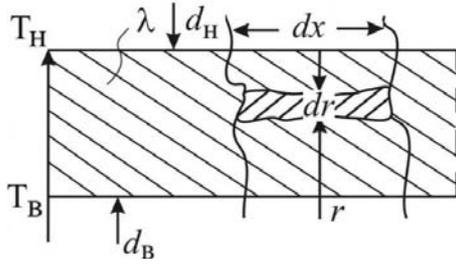


Рис. 2. Схема отвода тепла теплопроводностью через стенку круглой трубы

теплопроводности через стенку круглого канала (рис. 2) В результате имеем

$$-\lambda \frac{dT}{dr} 2\pi r dx = q_{v_01} e^{-\kappa_1 x} \pi (r^2 - r_H^2) dx. \quad (4)$$

Разделяя в (4) переменные и интегрируя по  $T$  от  $T_\theta$  до  $T_H$  и по  $r$  в пределах от  $r_\theta$  до  $r_H$ , получим выражение для расчета наружной температуры стенки канала по его длине

$$T_H(x) = T_{ж}^{ex} + \frac{q_{v_01} \pi (d_H^2 - d_\theta^2)}{4C_{ж} G_{ж} \kappa_1} (1 - e^{-\kappa_1 x}) + \frac{q_{v_01} (d_H^2 - d_\theta^2) e^{-\kappa_1 x}}{d d_{\theta 1}} + \frac{q_{v_01} e^{-\kappa_1 x}}{2\lambda} \left[ \left( \frac{d_H^2 - d_\theta^2}{8} \right) - \frac{d_H^2}{4} \ln \frac{d_H}{d_\theta} \right]. \quad (5)$$

**II режим.** В этом случае диэлектрическими свойствами обладает жидкость, движущаяся внутри канала. Схема задачи приведена на рис. 3.

1. Распределение температуры диэлектрической жидкости в круглом канале по длине найдется с использованием следующего элементарного теплового баланса.

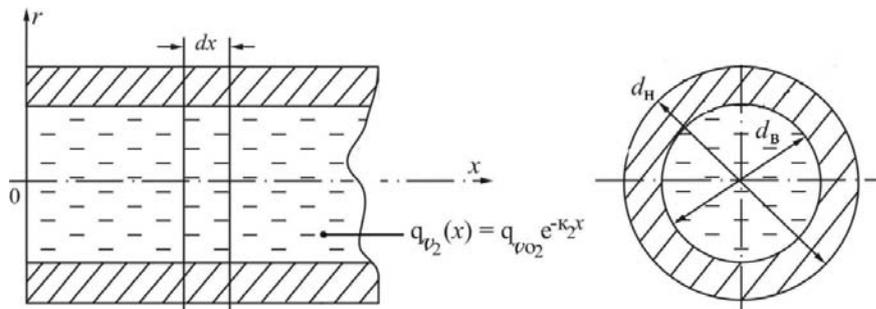


Рис. 3. СВЧ-нагрев диэлектрической жидкости в круглой трубе

Подвод тепла за счет поглощения СВЧ-энергии равен

$$q_{v_02} e^{-\kappa_2 x} \frac{\pi d_\theta^2}{4} dx,$$

а отвод связан с аккумулярованием этого тепла жидкостью

$$c_{ж} G_{ж} dT_{ж}.$$

В итоге имеем

$$q_{v_02} e^{-\kappa_2 x} \frac{\pi d_\theta^2}{4} dx = c_{ж} G_{ж} dT_{ж}. \quad (6)$$

Интегрируя (6) и подставляя пределы от  $T_{ж}^{ex}$  до  $T_{ж}(x)$  и от 0 до текущего  $x$ , получим зависимость температуры жидкости от координаты:

$$T_{ж}(x) = T_{ж}^{ex} + \frac{q_{v_02} \pi d_\theta^2}{4c_{ж} G_{ж} \kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 x}). \quad (7)$$

Температура на выходе из канал равна

$$T_{ж}^{вых} = T_{ж}^{ex} + \frac{q_{v_02} \pi d_\theta^2}{4c_{ж} G_{ж} \kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 l}).$$

2. Температурная функция для внутренней поверхности канала  $T_\theta(x)$  ищется из следующего дифференциального теплового баланса

$$q_{v_02} e^{-\kappa_2 x} \frac{\pi d_\theta^2}{4} dx = \alpha [T_{ж}(x) - T_\theta(x)] \pi d_\theta dx.$$

Эта температура равна

$$T_\theta(x) = T_{ж}^{ex} + \frac{q_{v_02} \pi d_\theta^2}{4c_{ж} G_{ж} \kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 x}) - \frac{q_{v_02} d_\theta^2 e^{-\kappa_2 x}}{4 \alpha d_\theta}. \quad (8)$$

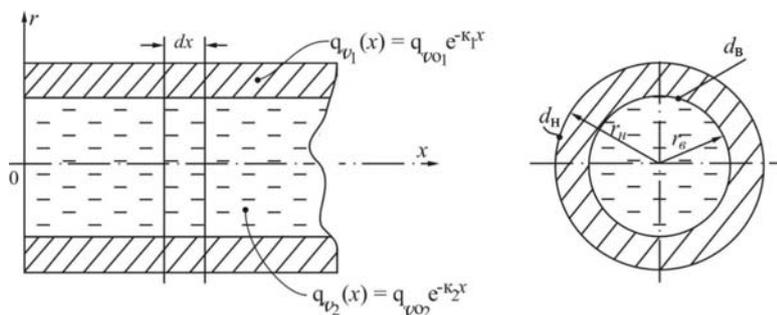


Рис. 4. Микроволновой нагрев жидкости и стенки круглой трубы в установившемся режиме

3. Температура на наружной поверхности канала  $T_n(x)$  найдется из теплового дифференциального баланса (см. рис. 2):

$$-\lambda \frac{dT}{dr} 2\pi r dx = q_{v02} e^{-\kappa_2 x} \pi (r^2 - r_n^2) dx,$$

решая который получим

$$T_n(x) = T_{жс}^{ex} + \frac{q_{v02} \pi d_г^2}{4c_{жс} G_{жс} \kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 x}) - \frac{q_{v02o} \pi d_г^2 e^{-\kappa_2 x}}{4\alpha d_г} - \frac{q_{v02} e^{-\kappa_2 x}}{2\lambda} \left[ (r_n^2 - r_г^2) - r_n^2 \ln \frac{r_n}{r_г} \right]. \quad (9)$$

**III режим.** Данный режим включает энерговыделение от поглощения микроволновой энергии как жидкостью, так и стенкой канала. Схема такого процесса показана на рис. 4.

1. Температура жидкости в канале. Этот параметр находится из дифференциального уравнения теплового баланса

$$q_{v01} e^{-\kappa_1 x} \pi \left( \frac{d_n^2}{4} - \frac{d_г^2}{4} \right) dx + q_{v02} e^{-\kappa_2 x} \frac{\pi d_г^2}{4} dx = c_{жс} G_{жс} dT_{жс}. \quad (10)$$

Интегралом уравнения (10) является выражение

$$T_{жс}(x) = T_{жс}^{ex} + \frac{1}{c_{жс} G_{жс}} \left[ q_{v01} \frac{\pi}{\kappa_1} \left( \frac{d_n^2}{4} - \frac{d_г^2}{4} \right) (1 - e^{-\kappa_1 x}) + q_{v02} \frac{\pi d_г^2}{4\kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 x}) \right]. \quad (11)$$

Температура жидкости на выходе из канала при  $x = l$  равна

$$T_{жс}^{вых} = T_{жс}^{ex} + \frac{1}{c_{жс} G_{жс}} \times \left[ q_{v01} \frac{\pi}{\kappa_1} \left( \frac{d_n^2}{4} - \frac{d_г^2}{4} \right) (1 - e^{-\kappa_1 l}) + q_{v02} \frac{\pi d_г^2}{4\kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 l}) \right].$$

Найдем экстремум функции  $T_{жс}(x)$  (11). Приравняв первую производную по  $x$  к нулю, найдем координату расположения максимальной температуры

$$x_{max_1} = \frac{\ln [q_{v02o} d_г^2] - \ln [q_{v01} (d_n^2 - d_г^2)]}{\kappa_1 + \kappa_2}. \quad (12)$$

Подставляя (12) в (11), определим максимальное значение температуры теплоносителя

$$T_{жс}^{max} = T_{жс}^{ex} + \frac{1}{c_{жс} G_{жс}} \times \left[ q_{v01} \frac{\pi}{\kappa_1} \left( \frac{d_n^2}{4} - \frac{d_г^2}{4} \right) (1 - e^{-\kappa_1 x_{max_1}}) + q_{v02o} \frac{\pi d_г^2}{4\kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 x_{max_1}}) \right].$$

2. Распределение по длине канала температуры внутренней поверхности стенки  $T_г(x)$  находится интегрированием дифференциального уравнения

$$\left[ q_{v01} e^{-\kappa_1 x} \pi \left( \frac{d_n^2}{4} - \frac{d_г^2}{4} \right) + q_{v02} e^{-\kappa_2 x} \frac{\pi d_г^2}{4} \right] dx = \alpha [T_г(x) - T_{жс}(x)] \pi d_г dx. \quad (13)$$

Решением (13) является следующее выражение:

$$T_{\theta}(x) = T_{\text{жс}}(x) + \frac{1}{\alpha} \times \left[ q_{v_{o1}} e^{-\kappa_1 x} \pi \left( \frac{d_H^2}{4} - \frac{d_{\theta}^2}{4} \right) + q_{v_{o2}} e^{-\kappa_2 x} \frac{\pi d_{\theta}^2}{4} \right].$$

В итоге окончательное решение для  $T_{\theta}(x)$  примет вид

$$T_{\theta}(x) = T_{\text{жс}}^{\text{ex}} + \frac{1}{c_{\text{жс}} G_{\text{жс}}} \times \left[ q_{v_{o1}} \frac{\pi}{\kappa_1} \left( \frac{d_H^2}{4} - \frac{d_{\theta}^2}{4} \right) (1 - e^{-\kappa_1 x}) + q_{v_{o2}} \frac{\pi d_{\theta}^2}{4 \kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 x}) \right] + \frac{1}{\alpha} \left[ q_{v_{o1}} e^{-\kappa_1 x} \pi \left( \frac{d_H^2}{4} - \frac{d_{\theta}^2}{4} \right) + q_{v_{o2}} e^{-\kappa_2 x} \frac{\pi d_{\theta}^2}{4} \right] \quad (14)$$

Исследуем функцию (14) на максимум. Приравнявая первую производную по  $x$  к нулю, получим координату  $x_{\text{max}_2}$  расположения максимальной температуры  $T_{\theta}^{\text{max}}$ :

$$x_{\text{max}_2} = \frac{1}{(\kappa_1 - \kappa_2)} \left\{ \ln \left[ q_{v_{o2}} d_{\theta}^2 \left( \frac{1}{c_{\text{жс}} G_{\text{жс}} \kappa_2} - \frac{\kappa_2}{\pi d_{\theta} \alpha} \right) \right] - \ln \left[ q_{v_{o1}} (d_H^2 - d_{\theta}^2) \left( \frac{1}{c_{\text{жс}} G_{\text{жс}} \kappa_1} - \frac{\kappa_1}{\pi d_{\theta} \alpha} \right) \right] \right\}. \quad (15)$$

Подставляя  $x_{\text{max}_2}$  из (15), имеем из (14) максимальное значение температуры внутренней поверхности стенки трубы  $T_{\theta}^{\text{max}}$ :

$$T_{\theta}^{\text{max}}(x_{\text{max}_2}) = T_{\text{жс}}^{\text{ex}} + \frac{1}{c_{\text{жс}} G_{\text{жс}}} \left[ q_{v_{o1}} \frac{\pi}{\kappa_1} \left( \frac{d_H^2}{4} - \frac{d_{\theta}^2}{4} \right) (1 - e^{-\kappa_1 x_{\text{max}_2}}) + q_{v_{o2}} \frac{\pi d_{\theta}^2}{4 \kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 x_{\text{max}_2}}) \right] + \frac{1}{\pi d_{\theta} \alpha} \left[ q_{v_{o1}} e^{-\kappa_1 x_{\text{max}_2}} \pi \left( \frac{d_H^2}{4} - \frac{d_{\theta}^2}{4} \right) + q_{v_{o2}} e^{-\kappa_2 x_{\text{max}_2}} \frac{\pi d_{\theta}^2}{4} \right].$$

3. Распределение температуры наружной стенки канала  $T_H(x)$  по длине найдется ин-

тегрированием следующего дифференциального теплового баланса (см. рис. 2).

$$q_{v_{o1}} \pi e^{-\kappa_1 x} \left( r^2 - \frac{d_{\theta}^2}{4} \right) dx = -\lambda \frac{dT}{dr} 2\pi r dx. \quad (16)$$

Интеграл последнего уравнения (16) имеет вид

$$T_H(x) = T_{\theta}(x) - \frac{q_{v_{o1}}}{2\lambda} e^{-\kappa_1 x} \left[ \left( \frac{d_H^2}{8} - \frac{d_{\theta}^2}{8} \right) - \frac{d_{\theta}^2}{4} \ln \frac{d_H}{d_{\theta}} \right].$$

Подставляя выражение  $T_{\theta}(x)$  из (14), выразим итоговую зависимость для наружной температуры стенки по длине канала:

$$T_H(x) = T_{\text{жс}}^{\text{ex}} + \frac{1}{c_{\text{жс}} G_{\text{жс}}} \left[ q_{v_{o1}} \frac{\pi}{\kappa_1} \left( \frac{d_H^2}{4} - \frac{d_{\theta}^2}{4} \right) (1 - e^{-\kappa_1 x}) + q_{v_{o2}} \frac{\pi d_{\theta}^2}{4 \kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 x}) \right] + \frac{1}{\pi d_{\theta} \alpha} \left[ q_{v_{o1}} e^{-\kappa_1 x} \pi \left( \frac{d_H^2}{4} - \frac{d_{\theta}^2}{4} \right) + q_{v_{o2}} e^{-\kappa_2 x} \frac{\pi d_{\theta}^2}{4} \right] - \frac{q_{v_{o1}}}{2\lambda} e^{-\kappa_1 x} \left[ \left( \frac{d_H^2}{8} - \frac{d_{\theta}^2}{8} \right) - \frac{d_{\theta}^2}{4} \ln \frac{d_H}{d_{\theta}} \right]. \quad (17)$$

Исследуем (17) на экстремум. Для этого приравняем первую производную к нулю. В результате найдем координату ее максимального значения:

$$x_{\text{max}_3} = (\kappa_2 - \kappa_1)^{-1} \ln \left[ \pi q_{v_{o1}} (d_H^2 - d_{\theta}^2) \left( \frac{1}{c_{\text{жс}} G_{\text{жс}} \kappa_1} - \frac{\kappa_1}{\pi d_{\theta} \alpha} \right) + q_{v_{o1}} \frac{k_1}{4\lambda} \left( d_H^2 - d_{\theta}^2 - 2d_{\theta}^2 \ln \frac{d_H}{d_{\theta}} \right) \right] - \ln \left[ \pi q_{v_{o2}} d_{\theta}^2 \left( \frac{1}{c_{\text{жс}} G_{\text{жс}} \kappa_2} - \frac{\kappa_2}{\pi d_{\theta} \alpha} \right) \right].$$

Подставляя  $x_{\text{max}_3}$  в (17), получим выражение для расчета  $T_H^{\text{max}}$

$$T_H^{\text{max}} = T_{\text{жс}}^{\text{ex}} + \frac{1}{c_{\text{жс}} G_{\text{жс}}} \left[ q_{v_{o1}} \frac{\pi}{\kappa_1} \left( \frac{d_H^2}{4} - \frac{d_{\theta}^2}{4} \right) (1 - e^{-\kappa_1 x_{\text{max}_3}}) + \right.$$

$$\begin{aligned}
 & \left. + q_{vo_2} \frac{\pi d_g^2}{4\kappa_2} (1 - e^{-\kappa_2 x_{max3}}) \right] + \\
 & + \frac{1}{\alpha} \left[ q_{vo_1} e^{-\kappa_1 x_{max3}} \pi \left( \frac{d_H^2}{4} - \frac{d_g^2}{4} \right) + q_{vo_2} e^{-\kappa_2 x_{max3}} \frac{\pi d_g^2}{4} \right] - \\
 & - \frac{q_{vo_1}}{2\lambda} e^{-\kappa_1 x_{max3}} \left[ \left( \frac{d_H^2}{8} - \frac{d_g^2}{8} \right) - \frac{d_g^2}{4} \ln \frac{d_H}{d_g} \right].
 \end{aligned}$$

### Заключение

Вопросы тепловой обработки движущихся сред в каналах в условиях диэлектрического нагрева находят все более широкое приложение, в частности, в нефтепроводах и других системах. С использованием элементарных тепловых балансов получены аналитические зависимости по установившемуся распределению по длине канала температуры теплоносителя, внутренней и внешней температуры стенки. Найдены максимальные значения и координаты их расположения. По этим данным дается оценка работоспособности технологического канала.

Полученные расчетные зависимости по определению температуры жидкости (2), (7), (11), внутренней (3), (8), (14) и внешней (5), (9), (17) температуры стенки по длине канала являются базовой информацией для выдачи экспертных оценок работоспособности такой системы.

Во-первых, из аналитических формул легко находится температура теплоносителя на выходе из канала. По требованию недопустимости кипения должно соблюдаться следующее неравенство:  $T_{ж}^{вых} \leq T_s(p)$ , где  $s$  – параметр насыщения,  $p$  – давление, под которым находится жидкость [6]. Если фазовый переход разрешен, то требуется уже другая расчетная зависимость по схеме двухфазной модели.

Во-вторых, важным расчетным параметром является максимальная температура стенки канала. Для каждого материала в результате ресурсных испытаний определено ее предельное значение. При любых режимах работы канала она не может превышать предельно допустимую [7].

В-третьих, расчетом находится также максимальная разность температур по сече-

нию стенки трубы. Этот параметр определяет максимальный уровень наиболее опасных растягивающих температурных напряжений, что в итоге гарантирует ресурсную надежность материала стенки канала [8].

Наконец, в-четвертых, подбором таких управляющих параметров, как расход жидкости через канал, интенсивность микроволнового воздействия на стенку и самой жидкости и др., удается настроить систему охлаждения / нагрева исследуемого канала.

### Список литературы

1. Диденко А. Н. СВЧ-энергетика. Теория и практика. М.: Наука, 2003. 446 с.
2. Диденко А. Н., Зверев Б. В. СВЧ-энергетика. М.: Наука, 2000. 320 с.
3. Окресс Э. СВЧ-энергетика: В 3 т. М.: Мир, 1971.
4. Саломатов В. В. Математическое моделирование СВЧ-нагрева угольного полумассива // Ползуновский вестник. 2012. № 3. С. 31–33.
5. Анфиногентов В. И. Численное моделирование СВЧ электромагнитного нагрева несжимаемой жидкости, движущейся в цилиндрической трубе // Электромагнитные волны и электронные системы. 2006. Т. 11, № 23. С. 3–9.
6. Вукалович М. П., Новиков И. И. Техническая термодинамика. М.: Энергия, 1968. 496 с.
7. Электронный справочник по предельно допустимым температурам материалов. URL: [Chemport.ru/data/](http://Chemport.ru/data/)
8. Гейтвуд Б. Е. Температурные напряжения. М.: Изд-во ИЛ, 1959. 473 с.

**D. V. Kudashkin**<sup>1</sup>, **V. V. Salomatov**<sup>1,2</sup>, **A. V. Salomatov**<sup>3</sup>

<sup>1</sup> *Novosibirsk State University*

*2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

<sup>2</sup> *Institute of Thermophysics SB RAS*

*1 Acad. Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

<sup>3</sup> *Public Joint Stock Company «Transneft»*

*57 Bolshaya Polyanka, Moscow, 119180, Russian Federation*

*kudashkindmitrii@yandex.ru, salomatov.vv@mail.ru, salomatov@ak.transneft.ru*

### **INSTALLED THERMAL RANGE OF THE ROUND CHANNEL IN THE CONDITIONS OF DIELECTRIC HEATING**

Using the method of elementary thermal balances, theoretical dependences were constructed on the calculation of the steady-state thermal conditions of a circular channel with a moving incompressible coolant under conditions of dielectric heating. Such local parameters along the channel length as the coolant temperature, internal and external wall temperature, and also their maximum values and location coordinates are found. According to these data, the working capacity of the technological channel under microwave influence is estimated.

*Keywords:* heat balance, dielectric heating, round channel, thermal conductivity coefficient, heat transfer coefficient.

*For citation:*

Kudashkin D. V., Salomatov V. V., Salomatov A. V. Installed Thermal Range of the Round Channel in the Conditions of Dielectric Heating. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 16–22. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-16-22

**В. В. Козлов<sup>1,2</sup>, Г. Р. Грек<sup>1</sup>, Ю. А. Литвиненко<sup>1</sup>  
А. Г. Шмаков<sup>2,3</sup>, В. В. Вихорев<sup>1,2</sup>**

<sup>1</sup> *Институт теоретической и прикладной механики  
им. С. А. Христиановича СО РАН  
ул. Институтская, 4/1, Новосибирск, 630090, Россия*

<sup>2</sup> *Новосибирский государственный университет  
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия*

<sup>3</sup> *Институт химической кинетики и горения  
им. В. В. Воеводского СО РАН  
ул. Институтская, 3, Новосибирск, 630090, Россия*

*kozlov@itam.nsc.ru, grek@itam.nsc.ru  
litur@itam.nsc.ru, shmakov@kinetics.nsc.ru*

## **ДИФфуЗИОННОЕ ГОРЕНИЕ ПЛОСКОЙ МИКРОСТРУИ ВОДОРОДА, ИСТЕКАЮЩЕЙ ИЗ ЩЕЛЕВОГО МИКРОСОПЛА НА ДО- И СВЕРХЗВУКОВОЙ СКОРОСТИ\***

Цель данной работы состоит в экспериментальном исследовании диффузионного горения плоской микроструи водорода, истекающей из щелевого микросопла на до- и сверхзвуковой скорости. В результате экспериментальных исследований получены следующие результаты. Впервые представлено четыре сценария диффузионного горения плоской микроструи водорода, включая сверхзвуковое горение при наличии сверхзвуковых ячеек, как по воздуху, так и по водороду. Установлено, что стабилизация дозвукового горения микроструи водорода связана с наличием «области перетяжки пламени», а сверхзвукового – с наличием сверхзвуковых ячеек. Обнаружен гистерезис процесса диффузионного горения плоской микроструи водорода в зависимости от способа поджигания микроструи (вблизи или вдали от среза сопла) и направления изменения скорости ее истечения (роста или уменьшения).

*Ключевые слова:* плоская микроструя водорода, диффузионное горение, «область перетяжки пламени», профиль скорости, сверхзвуковое горение, гистерезис.

### **Введение**

Экспериментальные исследования диффузионного горения круглой микроструи водорода [1–5] показали наличие различных сценариев протекания данного процесса в зависимости от нарастания скорости истечения микроструи в диапазоне диаметров

выходного отверстия от 0,25 до 1 мм. Обнаружены следующие сценарии диффузионного горения круглой микроструи водорода.

1. Горение чисто ламинарной микроструи с наличием ламинарного пламени большой дальности ( $U_0 \leq 150$  м/с).

---

\* Работа поддержана грантом РНФ № 16-19-10330 и частично (использовалось координатное устройство) грантом РФФИ № 16-07-00946.

2. Возникновение сферической «области перетяжки пламени» с наличием в ней ламинарной микроструи и ламинарного пламени с турбулизацией микроструи и пламени при преодолении ламинарной микроструи узкой области градиента плотности газа ( $U_0 > 150$  м/с).

3. Отрыв турбулентного пламени от области перетяжки пламени ( $U_0 > 200$  м/с).

4. Прекращение горения турбулентного участка микроструи при сохранении горения в области перетяжки пламени. Причем в данной ситуации горение в области перетяжки пламени сохраняется вплоть до трансзвуковых скоростей ее истечения, однако при наличии такого явления, как «запирание сопла» [5; 6] ( $U_0 > 331$  м/с).

5. Прекращение горения микроструи ( $U_0 \approx 331$  м/с).

Аналогичные сценарии горения были обнаружены и при диффузионном горении плоской микроструи водорода [2; 7]. Следует заметить, что запирание сопла происходило при достижении скорости истечения микроструи водорода близкой к скорости звука в воздухе ( $U_0 \approx 331$  м/с). Стабилизация горения как круглой, так и плоской микроструи обеспечивалась в данной ситуации наличием области перетяжки пламени и существованием в ней горения.

Тем не менее нам не удалось выйти на сверхзвуковое диффузионное горение микроструи водорода по причине запирания сопла областью перетяжки пламени, которая приводила к нагреву выхода микросопла и предотвращала отрыв пламени от его среза. Одной из характеристик сверхзвукового горения струйного течения, наряду с рядом других, является наличие сверхзвуковых ячеек как в струе, так и в пламени, но в ситуации отрыва пламени от среза сопла. Это детально продемонстрировано в работах [6; 8] при поджигании круглой микроструи водорода вдали от среза сопла. В данной ситуации можно было наблюдать наличие сверхзвуковых ячеек как в струе, так и в оторвавшемся от среза сопла пламени. Результаты экспериментальных и численных исследований горения круглых струй водорода при дозвуковых и сверхзвуковых скоростях их истечения детально представлены в работах [9–11].

Цель настоящей работы состоит в экспериментальных исследованиях особенностей

диффузионного горения плоской микроструи водорода, истекающей из щелевого микросопла. Особое внимание будет уделено исследованию характеристик развития данной микроструи на сверхзвуковой (относительно воздуха  $U_0 = 331$  м/с и водорода  $U_0 = 1284$  м/с) скорости ее истечения и при наличии сверхзвуковых ячеек. Будет проведено сравнение результатов исследования с результатами, представленными в работах [9–11].

Заметим, что исследование характеристик диффузионного горения плоской микроструи при сверхзвуковой скорости будет проведено впервые, так как до сих пор исследовалось горение водорода, главным образом, лишь в круглых микроструях.

### Экспериментальное оборудование и процедура исследования

На рис. 1 представлена схема эксперимента. В установку соплового аппарата (а) через блок управления электромагнитным клапаном типа 179В фирмы *MKS Instruments* объемного расхода газа (b), обеспечивающий точность измерения расхода газа в пределах 0,7 %, подавался водород из баллона (c) под давлением 100 атм. через редуктор (d). Управление расходом газа осуществлялось блоком управления, а показания расхода водорода регистрировалось на электронном табло (см. b). В эксперименте водород поступал в установку соплового аппарата (а), состоящую из форкамеры (1) с набором детурбулизирующих сеток (2), хонейкомба (3), и далее через цилиндрический микроканал длиной 200 мм в щелевое микросопло с размерами его выходного отверстия, указанными на рис. 1.

Процедура проведения исследований состояла из непосредственной видеосъемки процесса диффузионного горения микроструи водорода и видеосъемки теневой картины данного процесса (теневой метод Теплера на базе ИАБ-451) с помощью цифровой видеокамеры *Olympus SZ-17* с разрешением 12 МП.

Скорость истечения водорода ( $U_0$ , м/с) на выходе щелевого микросопла определялась по формуле  $U_0 = Q/S$ , где  $Q$ , см<sup>3</sup>/с – расход газа, измеряемый прецизионным расходомером (b), а  $S$ , см<sup>2</sup> – площадь отверстия выходной щели микросопла. Следует заметить,

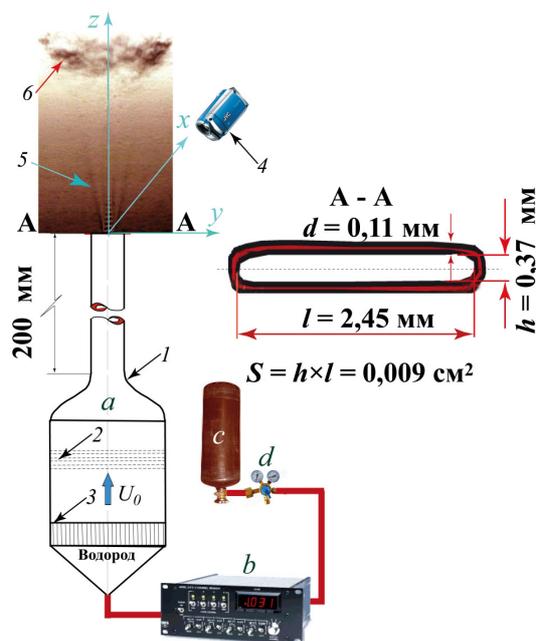


Рис. 1. Схема эксперимента: а – сопловой аппарат; б – блок управления электромагнитным клапаном расходомера; с – баллон сжатога водорода (100 атм.); д – редуктор. Сопловой аппарат (а) состоит из форкамеры (1), набора дегубулизирующих сеток (2), хонейкомба (3) и микротрубки длиной 200 мм с щелевым микросоплом. С помощью цифровой видеокамеры (4) фиксировались теньевые картины сверхзвуковых ячеек (5) и оторвавшегося пламени (6)

что определение скорости истечения водорода из микросопла таким способом на сверхзвуке не совсем корректно, поскольку не учитывается целый ряд параметров, в том числе сжимаемость газа. В данной ситуации был использован еще один метод определения скорости истечения микроструи по разности давления ( $\Delta P$ , кГс/м<sup>2</sup>) на входе ( $P_{\text{редуктор}}$ ) и выходе ( $P_{\text{атмосфера}}$ ) водорода из микросопла ( $\Delta P = P_{\text{редуктор}} - P_{\text{атмосфера}}$ ). При этом  $U_0$ , м/с =  $\sqrt{2\Delta P/\rho}$ , где  $\rho$ , кг/м<sup>3</sup> – плотность водорода.

## Результаты экспериментов

### Фото пламени

На рис. 2 представлены фотографии пламени при диффузионном горении микроструи водорода, истекающей из плоского микросопла в ситуации нарастания скорости ее истечения. При малой скорости ( $U_0 \leq 40$  м/с) истечения микроструи длина распространения ламинарного пламени достигает примерно

400 мм. С ростом скорости истечения микроструи можно наблюдать появление области перетяжки пламени и уменьшение длины распространения турбулентного пламени ( $h \approx 150 \div 200$  мм). Дальнейший рост скорости истечения микроструи приводит к отрыву пламени от среза сопла и росту длины его распространения до  $h \approx 400$  мм при сверхзвуковом истечении микроструи по водороду ( $U_0 \approx 1284$  м/с)

Цель данного представления состоит в том, чтобы показать процесс распространения пламени в пространстве, акцентируя внимание на достаточно большую его длину (до полуметра), несмотря на малый размер выходной щели микросопла. Тем не менее основное внимание необходимо уделить рассмотрению области горения микроструи вблизи ее выхода из сопла. Более детально рассмотреть данную область позволяет теневой метод исследования, позволяющий наблюдать ключевые структурные особенности диффузионного горения микроструи водорода по причине их зависимости от изменений градиента плотности газа как при его горении, так и без горения.

### Теньевые картины пламени при поджигании микроструи вблизи среза сопла в ситуации нарастания скорости (объемного расхода) водорода

На рис. 3, 4 представлены теньевые картины пламени при нарастании скорости  $U_0$  (объемного расхода  $Q$ ) истечения водорода в ситуации поджигания микроструи вблизи среза сопла. Можно наблюдать процесс эволюции области перетяжки пламени, ее исчезновения и отрыва пламени от среза сопла с постепенным ростом величины отрыва при сохранении горения турбулентной области пламени на большой скорости истечения микроструи  $U_0 \approx 778, 794$  м/с или  $Q \approx 700, 715$  см<sup>3</sup>/с.

### Теньевые картины пламени при поджигании микроструи водорода вдали от среза сопла в ситуации уменьшения скорости (объемного расхода) водорода

На рис. 5, 6 представлены теньевые картины пламени при снижении скорости  $U_0$  (объемного расхода  $Q$ ) истечения водорода



Рис. 2. Фотографии пламени при диффузионном горении микроструи водорода, истекающей из плоского ( $l = 2,45$  мм,  $h = 0,37$  мм) микросопла в ситуации нарастания скорости ее истечения:  $a-h$  – значение  $U_0$  от 40 до 1340 м/с, вид с узкой ( $h$ ) стороны микросопла

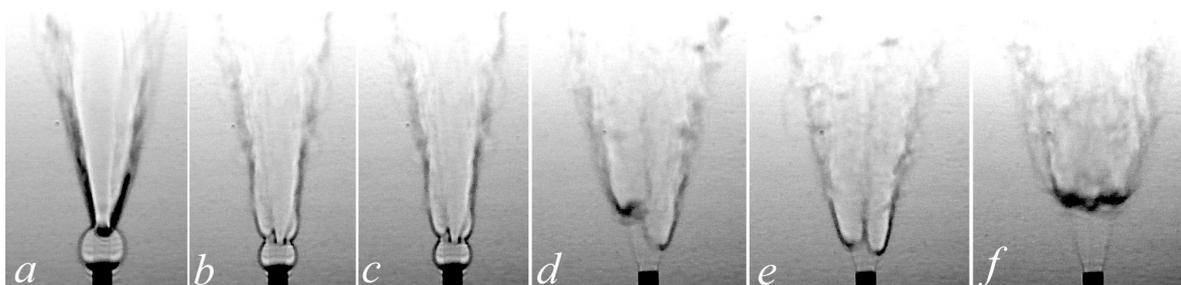


Рис. 3. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из плоского ( $l = 2,45$  мм,  $h = 0,37$  мм) микросопла при нарастании скорости истечения микроструи ( $U_0$ , м/с ( $Q$ , см<sup>3</sup>/с)):  $a - 333$  (300);  $b - 500$  (450);  $c - 555$  (500);  $d - 611$  (550);  $e - 722$  (650);  $f - 778$  (700), вид с широкой ( $l$ ) стороны микросопла

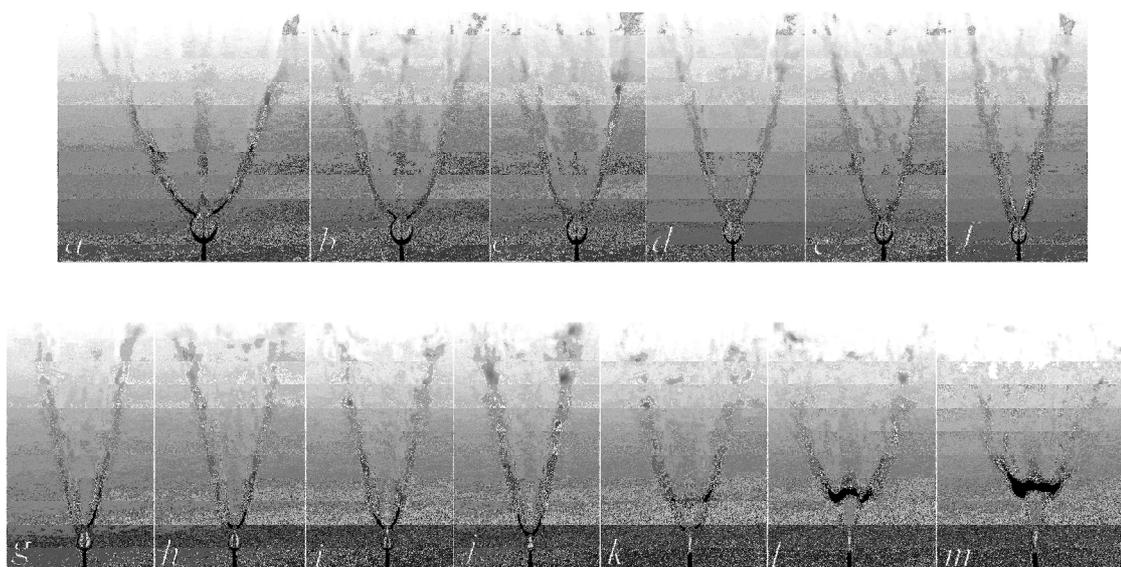


Рис. 4. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из плоского ( $l = 2,45$  мм,  $h = 0,37$  мм) микросопла при нарастании скорости истечения микроструи ( $U_0$ , м/с ( $Q$ , см<sup>3</sup>/с)):  $a - 333$  (300);  $b - 389$  (350);  $c - 433$  (390);  $d - 455$  (409);  $e - 500$  (450);  $f - 522$  (470);  $g - 555$  (500);  $h - 589$  (530);  $i - 655$  (590);  $j - 711$  (640);  $k - 717$  (645);  $l - 755$  (680);  $m - 794$  (715), вид с узкой ( $h$ ) стороны микросопла

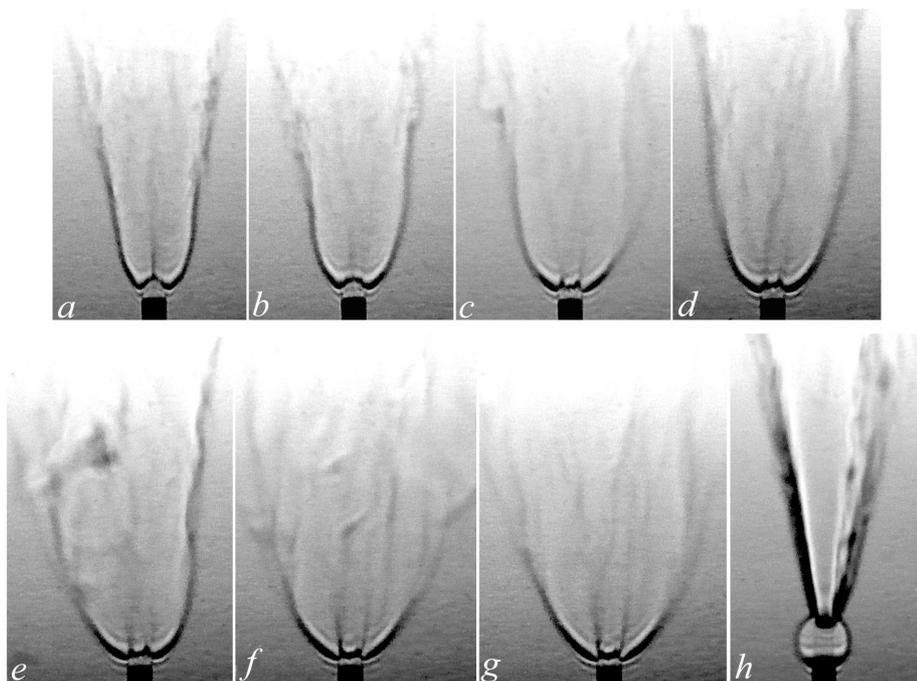


Рис. 5. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из плоского ( $l = 2,45$  мм,  $h = 0,37$  мм) микросопла при снижении скорости истечения микроструи ( $U_0$ , м/с ( $Q$ , см<sup>3</sup>/с)):  $a - 555$  (500);  $b - 500$  (450);  $c - 389$  (350);  $d - 378$  (340);  $e - 367$  (330);  $f - 355$  (319);  $g - 344$  (310);  $h - 333$  (300), вид с широкой ( $l$ ) стороны микросопла

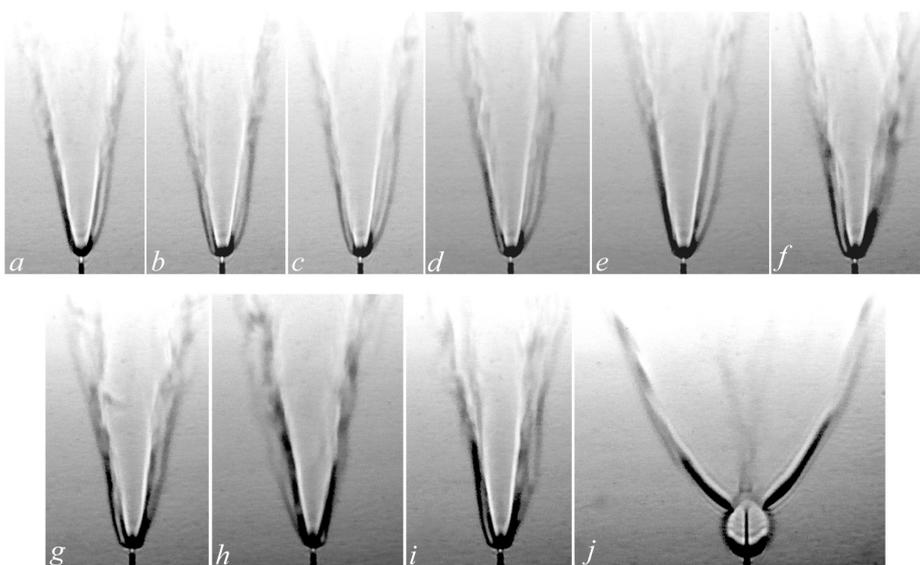


Рис. 6. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из плоского ( $l = 2,45$  мм,  $h = 0,37$  мм) микросопла при снижении скорости истечения микроструи ( $U_0$ , м/с ( $Q$ , см<sup>3</sup>/с)):  $a - 444$  (400);  $b - 422$  (380);  $c - 400$  (360);  $d - 389$  (350);  $e - 378$  (340);  $f - 367$  (330);  $g - 355$  (319);  $h - 348$  (313);  $i - 340$  (306);  $j - 333$  (300), вид с узкой ( $h$ ) стороны микросопла

в ситуации поджигания микроструи вдали от среза сопла. Можно наблюдать отрыв пламени от среза сопла, постепенное уменьшение

величины отрыва и, наконец, присоединение пламени с образованием области перетяжки пламени при  $U_0 \approx 333$  м/с или  $Q \approx 300$  см<sup>3</sup>/с.

*Гистерезис процесса развития и исчезновения области перетяжки пламени в зависимости от способа поджигания плоской микроструи водорода (вдали / вблизи от среза сопла) и при снижении или нарастании скорости ее истечения*

На рис. 7 представлен график процесса развития и исчезновения области перетяжки пламени в зависимости от снижения или нарастания скорости истечения плоской микроструи водорода. График ясно демонстрирует наличие гистерезиса в данном процессе. При поджигании микроструи вблизи среза сопла область перетяжки пламени, нагревая выход сопла, дает возможность существования данной области до момента ее исчезновения и возникновения отрыва пламени при достаточно большой скорости истечения микроструи ( $U_0 \approx 590$  м/с). Однако при снижении скорости истечения микроструи процесс инверсии отрыва пламени на его присоединение с появлением области перетяжки пламени происходит при  $U_0 \approx 333$  м/с, что коррелирует с ситуацией, наблюдаемой при поджигании микроструи водорода вдали от среза сопла.

Таким образом, в данном случае можно наблюдать гистерезисный цикл.

*Полуцикл А.* Наличие области перетяжки пламени, ее исчезновение и отрыв пламени при поджигании микроструи вблизи среза сопла и нарастании скорости ее истечения (позиция А).

*Полуцикл В.* Процесс инверсии от оторвавшегося пламени к его присоединению и возникновению области перетяжки пламени при уменьшении скорости истечения микроструи в ситуации ее поджигания вдали от среза сопла (позиция В).

*Сверхзвуковое горение плоской микроструи водорода при наличии сверхзвуковых ячеек относительно скорости звука в воздухе (331 м/с) и водороде (1284 м/с)*

На рис. 8 показаны профили средней ( $U$ ) и пульсационной ( $u'$ ) составляющих скорости при истечении плоской микроструи из щелевого микросопла [12]. По причине значительного удлинения микросопла  $l/h \approx 500$ , где  $l$  (200 мм) – длина микросопла,  $h$  (0,4 мм) – ширина выходной щели микросопла, профиль скорости на срезе сопла имеет параболическую форму [12]. В процессе исследований измерялась среднерасходная скорость  $U_0 = Q/S$ , которая примерно в 1,2 раза меньше максимальной скорости на оси микросопла.

На рис. 9 показаны теньевые картины диффузионного горения плоской микроструи водорода, истекающей из щелевого микросопла на дозвуковой  $U_0 \leq 333$  м/с (а) и сверхзвуковой (б)  $U_0 \approx 400$  м/с скорости. Видна классическая картина дозвукового горения микроструи водорода, в частности плоской микроструи (а), детально исследованная в работах [1–5]. С другой стороны, можно наблюдать теньевую картину сверх-

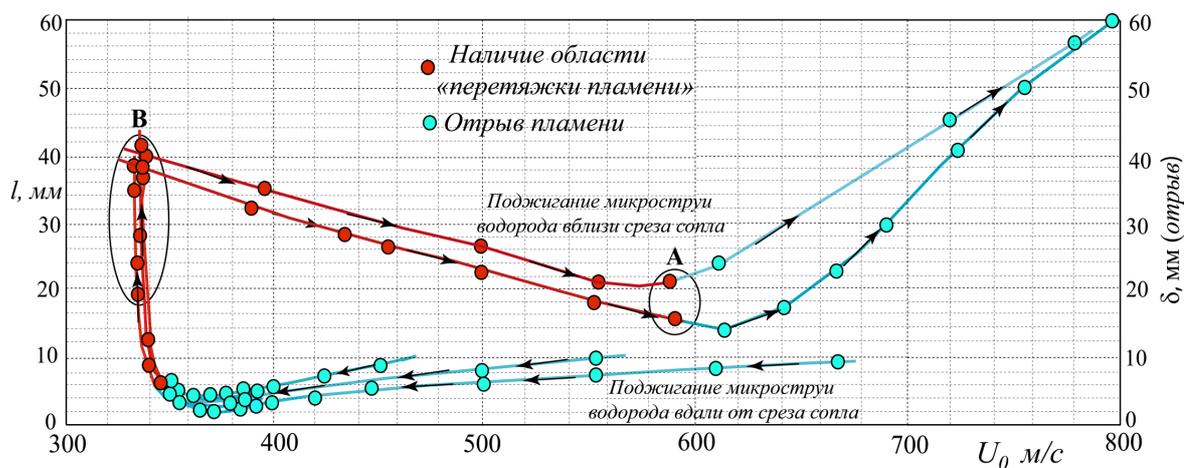


Рис. 7. График (гистерезис) зависимости процесса развития пламени микроструи водорода от скорости ее истечения и способа поджигания (вблизи / вдали от среза сопла), диапазон скорости исчезновения области перетяжки пламени и начало отрыва пламени (А) и диапазон скорости прекращения отрыва пламени и появления области перетяжки пламени (В). Стрелками указано направление изменения скорости микроструи (увеличение / уменьшение)

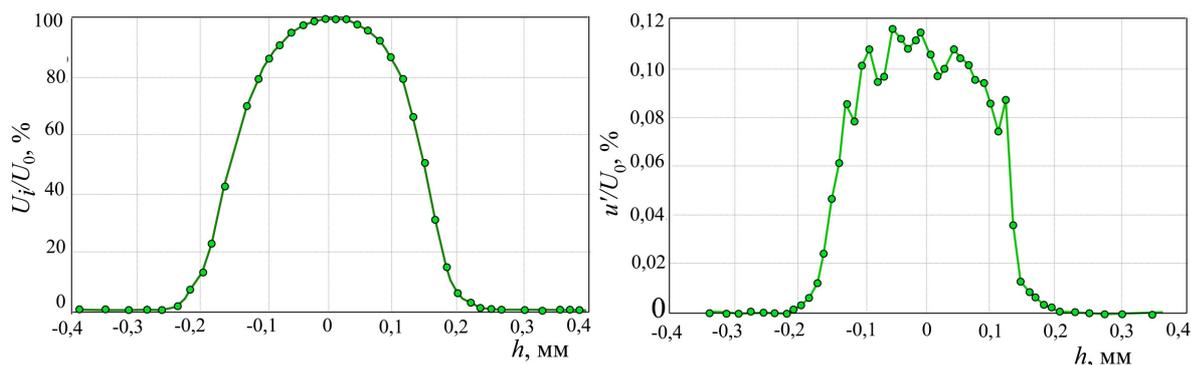


Рис. 8. Профили средней ( $U$ ) и пульсационной ( $u$ ) составляющих скорости на срезе плоского микросопла

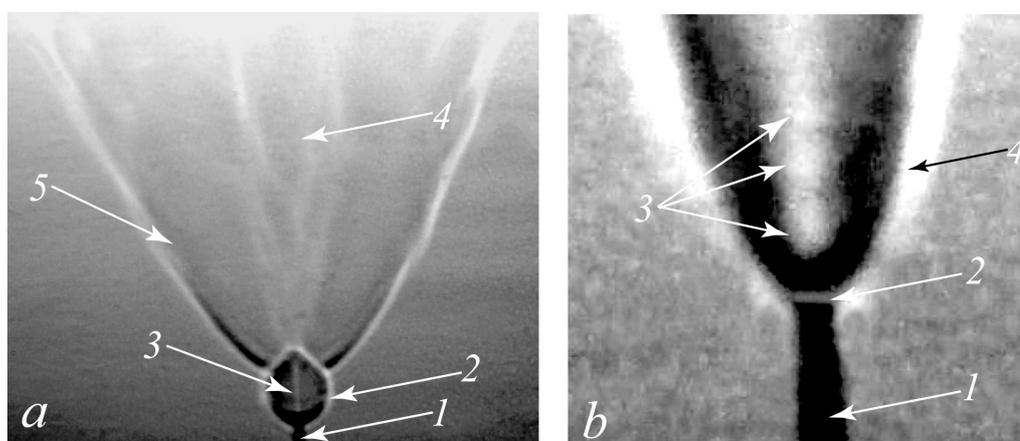


Рис. 9. Теневые картины диффузионного горения плоской микроструи водорода, истекающей из щелевого микросопла на дозвуковой ( $a$ ) и сверхзвуковой ( $b$ ) скорости относительно скорости звука в воздухе  $U_{\text{воздух}} = 331$  м/с ( $a$ : 1 – микросопло; 2 – область перетяжки пламени; 3 – ламинарная микроструя; 4 – турбулентная микроструя; 5 – турбулентное пламя;  $b$ : 1 – микросопло; 2 – отрыв пламени; 3 – сверхзвуковые ячейки; 4 – турбулентная микроструя). Можно наблюдать возникновение сверхзвуковых ячеек внутри оторвавшегося от сопла пламени, вид на узкую сторону микросопла ( $U_0 \approx 400$  м/с)

звукового горения плоской микроструи водорода с отрывом пламени от среза сопла и наличием сверхзвуковых ячеек в нем ( $b$ ). Причем в данной ситуации можно наблюдать сверхзвуковые ячейки, характерные для сверхзвукового горения (относительно скорости звука в воздухе) круглой микроструи водорода, исследованного в работе [13].

*Сверхзвуковое истечение воздуха и водорода из плоского микросопла при наличии и отсутствии горения*

На рис. 10 показано сравнение теневой картины, взятой из работы [14], сверхзвукового истечения плоской микроструи воздуха с аналогичными теневыми картинами исте-

чения плоской микроструи водорода как в отсутствие его горения, так и при горении. Во всех трех случаях можно наблюдать наличие сверхзвуковых ячеек.

*Сверхзвуковое горение плоской микроструи водорода при наличии сверхзвуковых ячеек относительно скорости звука в водороде (1284 м/с)*

На рис. 11 представлены теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из плоского микросопла при скорости истечения  $U_0 \approx 1484$  м/с, вид на узкую (I) и широкую (II) стороны микросопла:  $a$  – без горения,  $b$  – с горением. Можно наблюдать наличие сверхзвуковых

ячеек.  $U_0 = Q/S$ ,  $Q = 1345 \text{ см}^3/\text{с}$ ,  $S = 0,00906 \text{ см}^2$ ,  $U_0 = 1484 \text{ м/с}$ .  $U_0 = \sqrt{2\Delta P/\rho}$ ,  $\Delta P = 4,5 \text{ атм.} = 45000 \text{ кгс/м}^2$ ,  $\rho = 0,09 \text{ кг/м}^3$ ,  $U_0 = \sqrt{90000/0,09} = 1000 \text{ м/с}$ . Учитывая, что  $U_0 = 1000 \text{ м/с}$  – среднерасходная скорость микроструи, а профиль скорости параболический, максимальная скорость достигает скорости звука по водороду  $U_0 \approx 1284 \text{ м/с}$ .

На рис. 12 показаны теневые картины сверхзвукового  $U_0 \approx 1484 \text{ м/с}$  (a) и дозвукового  $U_0 \approx 1258 \text{ м/с}$ ,  $U_0 \approx 1159 \text{ м/с}$  (b, c соответственно) диффузионного горения плоской микроструи водорода, истекающей из плоского микросопла. Сверхзвуковые ячейки можно наблюдать на сверхзвуковой скорости микроструи (a) и их отсутствие при

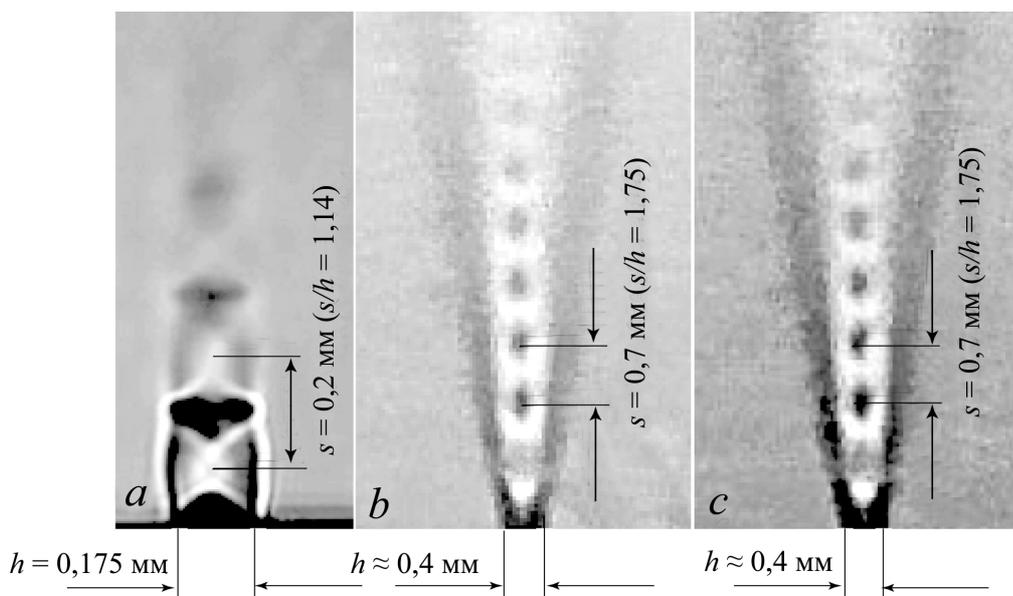


Рис. 10. Теневые картины микроструи воздуха (a) и водорода (b) без горения и при диффузионном горении (c), истекающих на сверхзвуковой скорости ( $M > 1$ ) из плоского микросопла при наличии сверхзвуковых ячеек. Размеры плоского микросопла:  $h = 0,175 \text{ мм}$ ,  $l = 3,9 \text{ мм}$  (a) взято из работы [14],  $h \approx 0,4 \text{ мм}$ ,  $l \approx 2,7 \text{ мм}$  (b, c) в данных экспериментах

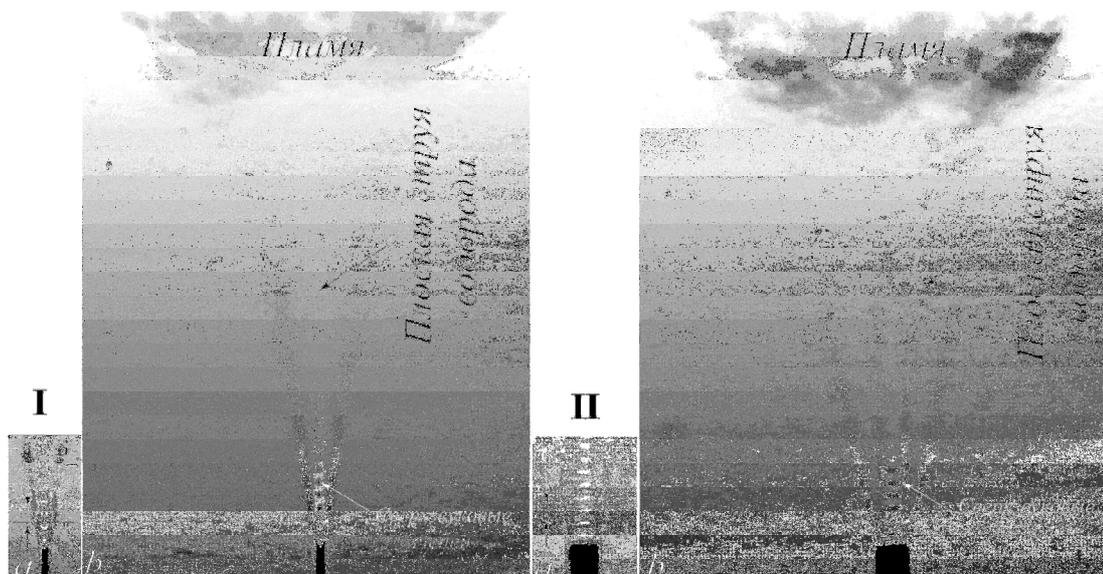


Рис. 11. Теневая картина диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из плоского микросопла при скорости истечения  $U_0 \approx 1484 \text{ м/с}$ , вид на узкую (I) и широкую (II) стороны микросопла: a – без горения, b – с горением

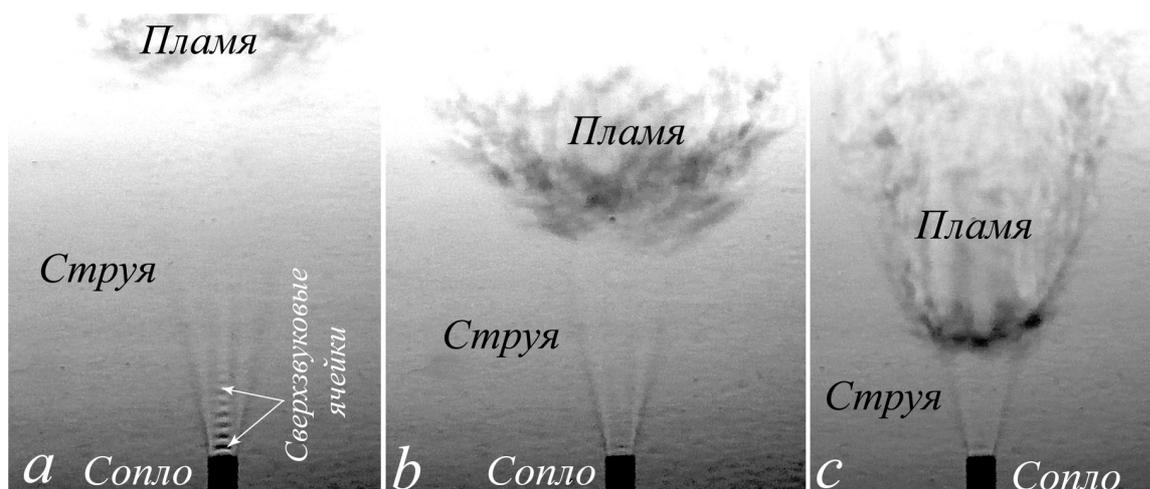


Рис. 12. Теневые картины сверхзвукового  $U_0 \approx 1484$  м/с (а) и дозвукового  $U_0 \approx 1258$  м/с,  $U_0 \approx 1159$  м/с (b, c) диффузионного горения плоской микроструи водорода, истекающей из плоского микросопла. Сверхзвуковые ячейки можно наблюдать на сверхзвуковой скорости микроструи (а) и их отсутствие при выходе на дозвуковую скорость истечения и горения микроструи (b, c). Вид на широкую (l) сторону микросопла

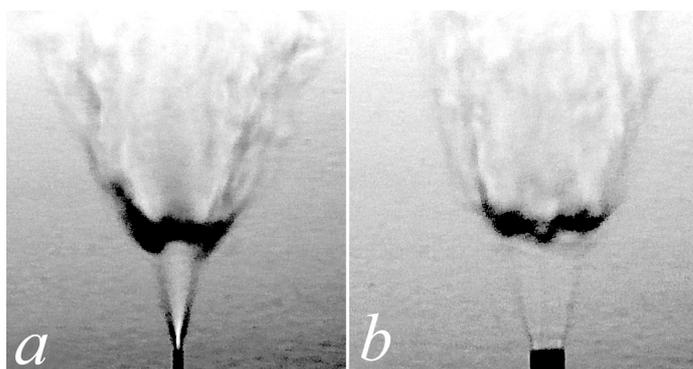


Рис. 13. Теневые картины микроструи и пламени при диффузионном горении плоской микроструи водорода. Можно увидеть изменения формы и конфигурации микроструи и пламени в зависимости от стороны наблюдения (а – ширина щели ( $h$ ); b – длина щели ( $l$ )) и при отрыве пламени ( $U_0 \approx 1159$  м/с)

выходе на дозвуковую скорость истечения и горения микроструи (b, c).

На рис. 13 представлены теневые картины микроструи и пламени при диффузионном горении плоской микроструи водорода. Можно наблюдать изменения формы и конфигурации как микроструи, так и пламени в зависимости от стороны наблюдения: а – ширина щели ( $h$ ), b – длина щели ( $l$ ). В данной ситуации показано горение микроструи при отрыве пламени на скорости ее истечения  $U_0 \approx 1159$  м/с.

На рис. 14 показаны теневые картины плоской микроструи водорода вблизи среза сопла в увеличенном масштабе в отсутствие

горения, но при максимальной скорости истечения ( $U_0 \approx 1484$  м/с). Можно наблюдать наличие сверхзвуковых ячеек.

На рис. 15 представлены теневые картины отрыва пламени при диффузионном горении плоской микроструи водорода при различной скорости ее истечения. Можно наблюдать, как меняется величина отрыва пламени от среза сопла в данной ситуации: а –  $h \approx 45\text{--}54$  мм при  $U_0 \approx 1484$  м/с; b –  $h \approx 20\text{--}23$  мм при  $U_0 \approx 1258$  м/с.

На рис. 16 показано сравнение теневых картин сверхзвукового течения плоской микроструи воздуха (а – взято из работы [14], b, c – настоящие исследования) и водо-

рода в отсутствие горения (*d*). Во всех случаях можно ясно видеть сверхзвуковые ячейки различного масштаба и периодичности в зависимости от параметров выходной щели микросопла. Рис. 16, *e* демонстрирует процесс сверхзвукового диффузионного горения плоской микроструи водорода при наличии сверхзвуковых ячеек.

Таким образом, представленные результаты экспериментов указывают на то, что существует четыре основных сценария диффузионного горения плоской (как и для круглой [1; 3–7]) микроструи водорода в зависимости от скорости ее истечения. Это следующие сценарии (рис. 17). Ламинарное горение при наличии ламинарной микро-

струи и ламинарного пламени (рис. 17, *a*,  $U_0 \leq 150$  м/с). Возникновение и развитие области перетяжки пламени с ламинарной микроструей и пламенем сферической формы, наличием узкой области градиента плотности газа, преодолевая которую, микроструя и пламя становятся турбулентными (рис. 17, *b*,  $U_0 \geq 150$  м/с). Исчезновение области перетяжки пламени, отрыв пламени от среза сопла и сверхзвуковое горение микроструи относительно скорости звука в воздухе (рис. 17, *c*,  $U_0 \geq 330$  м/с). Нарастание величины отрыва пламени от среза сопла и сверхзвуковое горение микроструи относительно скорости звука в водороде (рис. 17, *d*,  $U_0 \geq 1280$  м/с).

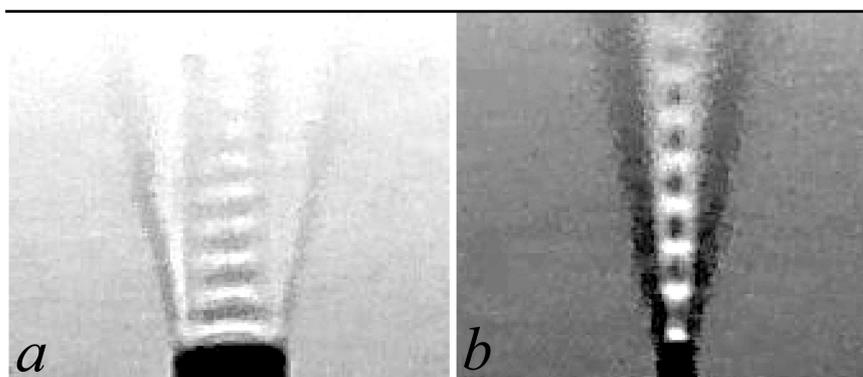


Рис. 14. Теневые картины плоской микроструи водорода в отсутствие горения, но при максимальной скорости истечения ( $U_0 \approx 1484$  м/с): наличие сверхзвуковых ячеек по водороду ( $U_{\text{водород}} = 1284$  м/с), вид со стороны *l* (*a*) и *h* (*b*)

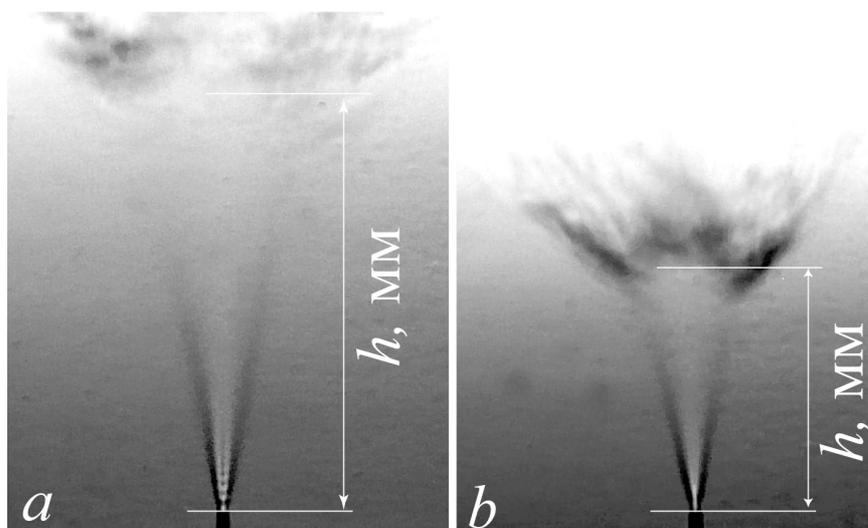


Рис. 15. Теневые картины пламени при диффузионном горении плоской микроструи водорода при различной скорости ее истечения: *a* –  $U_0 \approx 1484$  м/с ( $h \approx 45\text{--}54$  мм); *b* –  $U_0 \approx 1258$  м/с ( $h \approx 20\text{--}23$  мм)

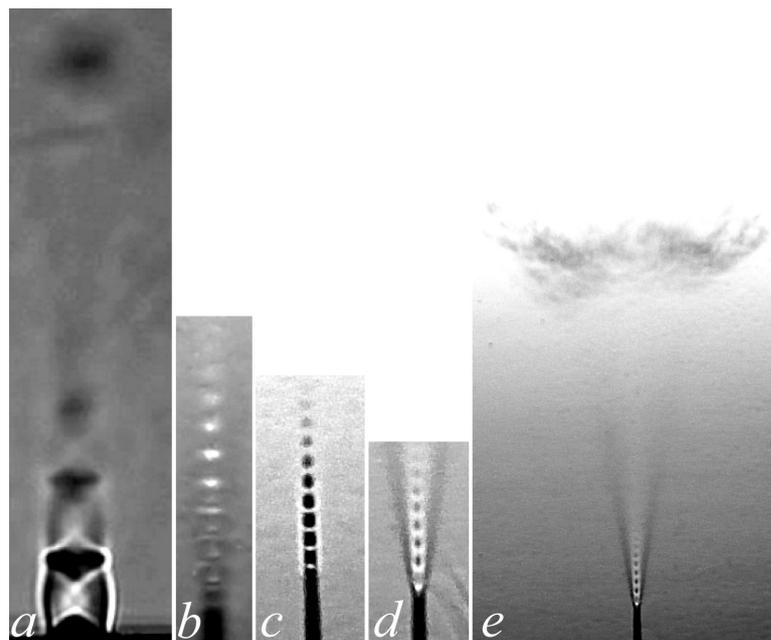


Рис. 16. Сравнение теневых картин сверхзвукового течения плоской микроструи воздуха (а–с) и водорода без горения (d) и с горением (e) при наличии сверхзвуковых ячеек: ширина микросопла  $h = 0,175$  мм (a) и  $h \approx 0,4$  мм (b–e). Вид на узкую (a) и широкую (b) сторону и со стороны микросопла (c–e)

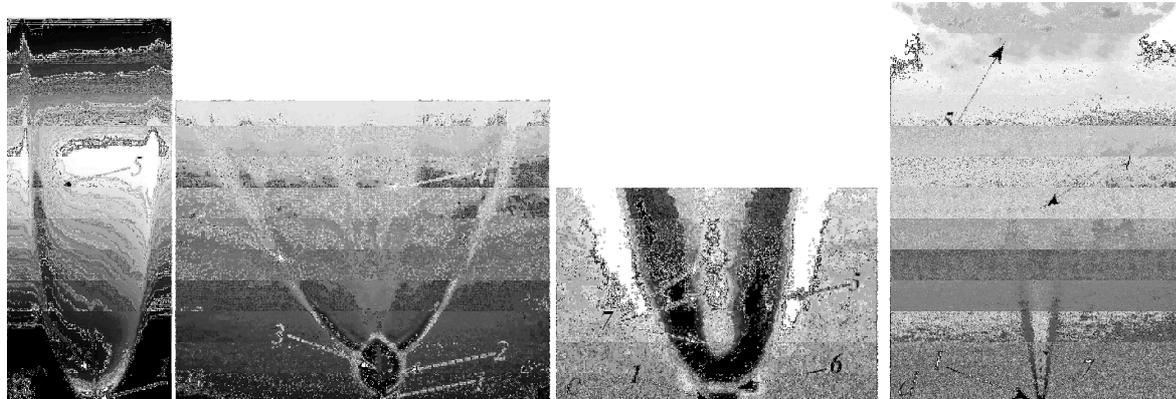


Рис. 17. Теневые картины четырех сценариев диффузионного горения плоской микроструи водорода в зависимости от скорости ее истечения (a,  $U_0 \leq 150$  м/с; b,  $U_0 \geq 150$  м/с; c,  $U_0 \geq 330$  м/с; d,  $U_0 \geq 1280$  м/с): 1 – микросопло, 2 – «область перетяжки пламени», 3 – ламинарная микроструя, 4 – турбулентная микроструя, 5 – пламя, 6 – отрыв пламени, 7 – сверхзвуковые ячейки.

Результаты экспериментальных и численных исследований горения круглых струй водорода при дозвуковых и сверхзвуковых скоростях их истечения детально рассмотрены в работах [9–11]. На рис. 18, а представлен график зависимости отрыва диффузионного пламени круглой микроструи водорода от скорости ее истечения по данным работы [10]. Видно, что зависимость линейная. Максимальная скорость,

которую достигли авторы при  $d = 1$  мм, более чем в 1,5 раза превышает скорость звука в водороде, и с увеличением диаметра выходного отверстия сопла эта скорость уменьшалась, но, тем не менее, превышала скорость звука в водороде. Следует заметить, что авторы работы [10] не приводят картин теневой визуализации течений, хотя они такие исследования проводили. Наблюдали ли они наличие сверхзвуковых ячеек

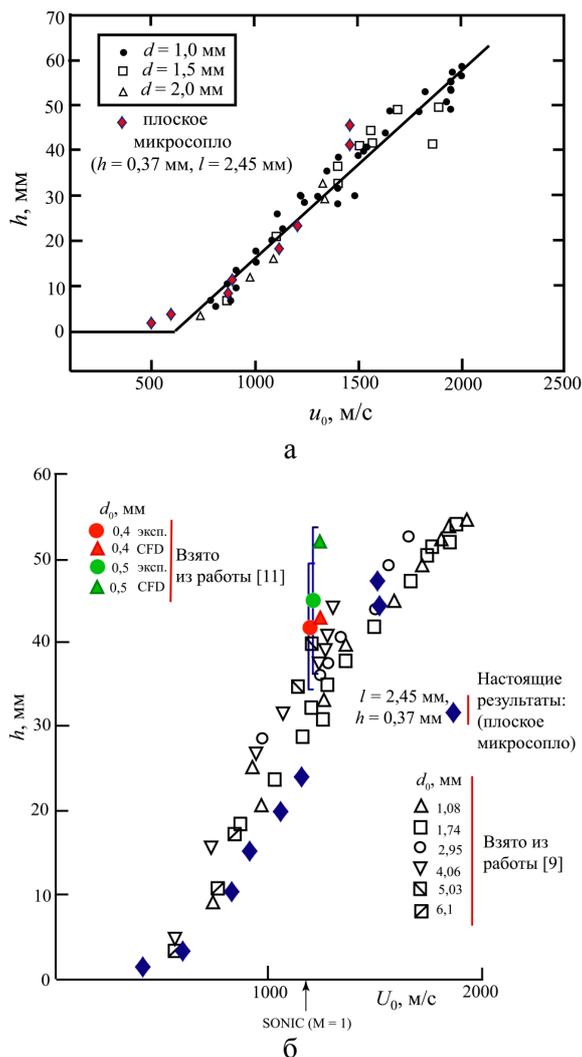


Рис. 18. График зависимости величины отрыва пламени от скорости истечения плоской микроструи водорода при ее диффузионном горении: а – по данным работы [10]; б – по данным работ [9; 11] и настоящего исследования

в процессе горения струй на сверхзвуковой скорости, нигде не отмечено. Результаты экспериментальных исследований зависимости величины отрыва пламени от скорости при диффузионном горении плоской микроструи, полученные в данной работе, также нанесены на график (см. рис. 18, а). Видно хорошее совпадение наших экспериментальных данных с представленной зависимостью из работы [10]. Однако в отличие от данных работы [10] наши результаты исследования, указывающие на сверхзвуковое горение плоской микроструи, подкреплены одной из важных характеристик такого процесса – наличием сверхзвуковых ячеек.

В презентации [11] представлены результаты экспериментов и численного моделирования (CFD) процесса горения недорасширенных водородных струй при сверхзвуковой скорости их истечения. Показано, что моделирование формы приподнятого пламени и высоты его отрыва коррелирует с результатами физического эксперимента. Обнаружено, что воспламенение круглой водородной микроструи при  $d = 0,3$  мм не происходит, а при  $d = 0,5$  мм микроструя воспламенялась. Детально результаты исследований представлены в работе [9], где на график (см. рис. 18, б) нанесены данные эксперимента и численных расчетов. Здесь же отображены результаты наших экспериментов.

Таким образом, данные экспериментальных исследований диффузионного горения плоской микроструи водорода хорошо коррелируют с результатами экспериментальных и численных исследований диффузионного горения круглых струй водорода, изученных авторами работ [9–11].

## Выводы

В результате экспериментальных исследований диффузионного горения плоской микроструи водорода получены следующие результаты. Впервые представлено четыре сценария диффузионного горения плоской микроструи водорода, включая сверхзвуковое горение при наличии сверхзвуковых ячеек как по воздуху, так и по водороду. Установлено, что стабилизация дозвукового горения микроструи водорода связана с наличием области перетяжки пламени, а сверхзвукового горения микроструи – с наличием сверхзвуковых ячеек. Обнаружен гистерезис процесса диффузионного горения плоской микроструи водорода в зависимости от способа поджигания микроструи (вблизи или вдали от среза сопла) и направления изменения скорости ее истечения (роста или уменьшения).

## Список литературы

1. Шмаков А. Г., Грек Г. Р., Козлов В. В., Коробейничев О. П., Литвиненко Ю. А. Различные режимы диффузионного горения круглой струи водорода в воздухе // Вестн. НГУ. Серия: Физика. 2015. Т. 10, вып. 2. С. 27–41.

2. Литвиненко Ю. А., Грек Г. Р., Козлов В. В., Коробейничев О. П., Шмаков А. Г. Структура присоединенного диффузионного пламени микроструи водорода, истекающей из щелевого сопла // Вестн. НГУ. Серия: Физика. 2015. Т. 10, вып. 2. С. 52–66.
3. Грек Г. Р., Катасонов М. М., Козлов Г. В., Литвиненко М. В. Диффузионное горение водорода (круглое скошенное сопло) // Вестн. НГУ. Серия: Физика. 2015. Т. 10, вып. 2. С. 42–51.
4. Kozlov V. V., Grek G. R., Korobeinichev O. P., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G. Combustion of a high-velocity hydrogen microjet effluxing in air // *Doklady Physics*. 2016. Vol. 61, iss. 9. P. 457–462.
5. Шмаков А. Г., Грек Г. Р., Козлов В. В., Козлов Г. В., Литвиненко Ю. А. Экспериментальное исследование диффузионного горения высокоскоростной круглой микроструи водорода. Часть 1. Присоединенное пламя, дозвуковое течение // *Сибирский физический журнал*. 2017. Т. 12, № 2. С. 28–45.
6. Kozlov V. V., Grek G. R., Kozlov G. V., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G. Experimental study on diffusion combustion of high-speed hydrogen round microjets // *International Journal of Hydrogen Energy*. Elsevier, 2018.
7. Kozlov V. V., Grek G. R., Korobeinichev O. P., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G. Features of diffusion combustion of hydrogen in the round and plane high-speed microjets (Part II) // *International Journal of Hydrogen Energy*. Elsevier, 2016. Vol. 41, iss. 44. P. 20240–20249.
8. Козлов В. В., Грек Г. Р., Козлов Г. В., Литвиненко Ю. А., Шмаков А. Г. Экспериментальное исследование диффузионного горения круглой микроструи водорода при ее зажигании вдали от среза сопла // *Сибирский физический журнал*. 2017. Т. 12, № 3. С. 62–73.
9. Kalghatgi G. T. Lift-off heights and visible lengths of vertical turbulent jet diffusion flames in still air // *Combust. Sci. Technol*. 1984. Vol. 41, iss. 1-2. P. 14–29.
10. Аннушкин Ю. М., Свердлов Е. Д. Исследование устойчивости диффузионных затопленных пламен при дозвуковом и нерасчетном сверхзвуковом истечениях газобразных топлив // *Химическая физика*. Водород, параметры горения и взрыва. М.: Физматлит, 2008. С. 53–63.
11. Shentsov V., Sakatsume R., Makarov D., Takeno K., Molkov V. Lift-off and blow-out of under-expanded jets: experiments versus simulations // 8<sup>th</sup> International Seminar on Fire and Explosion. Hefei, China, 2016.
12. Shmakov A. G., Grek G. R., Kozlov V. V., Litvinenko Yu. A. Influence of initial and boundary conditions at the nozzle exit upon diffusion combustion of a hydrogen microjet // *International Journal of Hydrogen Energy*. Elsevier, 2017. Vol. 42, iss. 24. P. 15913–15924.
13. Козлов В. В., Грек Г. Р., Литвиненко М. В., Литвиненко Ю. А., Шмаков А. Г. Экспериментальное исследование диффузионного горения высокоскоростной круглой микроструи водорода. Часть 2. Приподнятое пламя, сверхзвуковое течение // *Сибирский физический журнал*. 2017. Т. 12, № 2. С. 46–59.
14. Aniskina V. M., Maslov A. A., Mironov S. G., Tsyryulnikov I. S., Timofeev I. V. An Experimental Study of the Structure of Supersonic Flat Underexpanded Microjets // *Technical Physics Letters*. 2015. Vol. 41. No. 5. P. 508–510.

V. V. Kozlov<sup>1,2</sup>, G. R. Grek<sup>1</sup>, Yu. A. Litvinenko<sup>1,2</sup>  
A. G. Shmakov<sup>2,3</sup>, V. V. Vikhorev<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> *Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS  
4/1 Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

<sup>2</sup> *Novosibirsk State University  
2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

<sup>3</sup> *Voevodsky Institute of Chemical Kinetics and Combustion SB RAS  
3 Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

*kozlov@itam.nsc.ru, grek@itam.nsc.ru  
litur@itam.nsc.ru, shmakov@kinetics.nsc.ru*

### **DIFFUSION COMBUSTION OF PLANE HYDROGEN MICROJET EFFLUX FROM SLOTTED MICRONOZZLE AT SUB- AND SUPERSONIC VELOCITY**

The purpose of this work is experimental study of the plane hydrogen microjet diffusion combustion efflux from slotted micronozzle at sub - and supersonic velocity. As a result of these studies the following results are received. For the first time, four scenarios of the plane hydrogen microjet diffusion combustion, including supersonic combustion in the presence of supersonic cells as by air, and on hydrogen are found. It is shown that stabilization of subsonic combustion of the hydrogen microjet is connected with existence of «bottleneck flame region». On the other hand, stabilization of supersonic combustion of the hydrogen microjet is connected with existence of the supersonic cells. The hysteresis of the plane hydrogen microjet diffusion combustion depending on microjet ignition (near or far from a nozzle exit) and direction of its velocity efflux change (growth or reduction) is found.

*Keywords:* hydrogen plane microjet, diffusion combustion, «bottleneck flame region», mean velocity profile, sub – and supersonic combustion, hysteresis.

*For citation:*

Kozlov V. V., Grek G. R., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G., Vikhorev V. V. Diffusion Combustion of Plane Hydrogen Microjet Efflux from Slotted Micronozzle at Sub- and Supersonic Velocity. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 23–36. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-23-36

**В. В. Козлов**<sup>1,2</sup>, **Г. Р. Грек**<sup>1</sup>, **Ю. А. Литвиненко**<sup>1</sup>  
**А. Г. Шмаков**<sup>2,3</sup>, **В. В. Вихорев**<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> *Институт теоретической и прикладной механики  
им. С. А. Христиановича СО РАН  
ул. Институтская, 4/1, Новосибирск, 630090, Россия*

<sup>2</sup> *Новосибирский государственный университет  
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия*

<sup>3</sup> *Институт химической кинетики и горения  
им. В. В. Воеводского СО РАН  
ул. Институтская, 3, Новосибирск, 630090, Россия*

*kozlov@itam.nsc.ru, grek@itam.nsc.ru  
litur@itam.nsc.ru, shmakov@kinetics.nsc.ru*

## **ДИФфуЗИОННОЕ ГОРЕНИЕ КРУГЛОЙ МИКРОСТРУИ ВОДОРОДА ПРИ ДО- И СВЕРХЗВУКОВОЙ СКОРОСТИ ИСТЕЧЕНИЯ ИЗ СОПЛА**

Цель данной работы состоит в экспериментальном исследовании диффузионного горения круглых микро- струй водорода на до- и сверхзвуковой скорости. В результате экспериментальных исследований получены следующие результаты. Впервые представлено четыре сценария диффузионного горения круглой микроструи водорода, включая «сверхзвуковое горение» при наличии сверхзвуковых ячеек как по воздуху, так и по водороду. Установлено, что стабилизация дозвукового горения микроструи водорода связана с наличием «области перетяжки пламени», а «сверхзвукового горения» микроструи – с наличием сверхзвуковых ячеек. Обнаружен гистерезис процесса диффузионного горения круглой микроструи водорода в зависимости от способа поджигания микро- струи (вблизи или вдали от среза сопла) и направления изменения скорости ее истечения (роста или уменьшения). Показано, что «сверхзвуковое диффузионное горение» круглой микроструи водорода с наличием сверхзвуковых ячеек по водороду реализуется в диапазоне диаметров выходного отверстия от 0,25 до 1 мм.

*Ключевые слова:* круглая микроструя водорода, диффузионное горение, «область перетяжки пламени», профиль скорости, «сверхзвуковое горение», гистерезис, теневой метод исследования, теневые картины горения.

### **Введение**

Экспериментальные исследования диффузионного горения круглой микроструи водорода [1–5] показали наличие различных сценариев протекания данного процесса в зависимости от нарастания скорости истечения микроструи в диапазоне диаметров

выходного отверстия от 0,25 до 1 мм. Обнаружены следующие сценарии диффузионного горения круглой микроструи водорода.

1. Горение чисто ламинарной микроструи с наличием ламинарного пламени большой дальности ( $U_0 \leq 150$  м/с).

2. Возникновение сферической «области перетяжки пламени» с наличием в ней ла-

---

\* Работа поддержана грантом РФФ № 16-19-10330 и грантом РФФИ № 16-07-00946.

минарной микроструи и ламинарного пламени с турбулизацией микроструи и пламени при преодолении ламинарной микроструи узкой области градиента плотности газа ( $U_0 > 150$  м/с).

3. Отрыв турбулентного пламени от области перетяжки пламени ( $U_0 > 200$  м/с).

4. Прекращение горения турбулентного участка микроструи при сохранении горения в «области перетяжки пламени». Причем в данной ситуации горение в области перетяжки пламени сохраняется вплоть до трансзвуковых скоростей ее истечения, однако при наличии такого явления, как «запирание сопла» [5; 6] ( $U_0 > 331$  м/с).

5. Прекращение горения микроструи ( $U_0 \approx 331$  м/с).

Аналогичные сценарии горения были обнаружены и при диффузионном горении плоской микроструи водорода [2; 7]. Следует заметить, что запирание сопла происходило при достижении скорости истечения микроструи водорода, близкой к скорости звука в воздухе ( $U_0 \approx 331$  м/с). Стабилизация горения как круглой, так и плоской микроструи обеспечивалась в данной ситуации наличием области перетяжки пламени и существованием в ней горения.

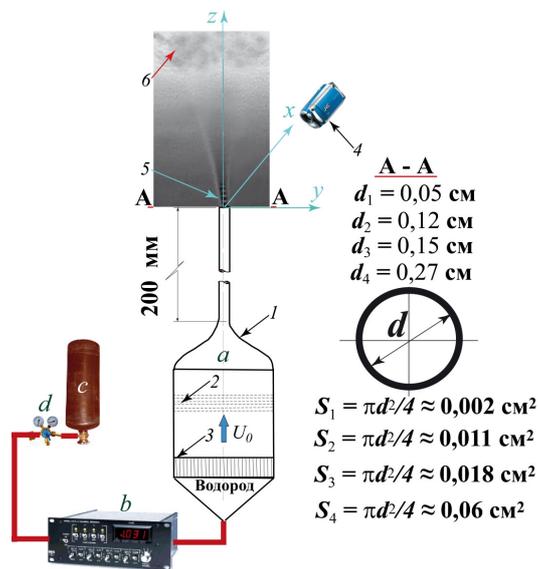


Рис. 1. Схема эксперимента: *a* – сопловой аппарат; *b* – блок управления электромагнитным клапаном расхода; *c* – баллон сжатого водорода (100 атм.); *d* – редуктор. Сопловой аппарат (*a*) состоит из форкамеры (1), набора детурбулизирующих сеток (2), хонейкомба (3) и микротрубки длиной 200 мм с выходным соплом. С помощью цифровой видеокамеры (4) фиксировались теневые картины сверхзвуковых ячеек (5) и оторвавшегося пламени (6)

Тем не менее нам не удалось выйти на «сверхзвуковое диффузионное горение» микроструи водорода по причине запирания сопла областью перетяжки пламени, которая приводила к нагреву выхода микросопла и предотвращала отрыв пламени от его среза. Одной из характеристик сверхзвукового горения струйного течения является наличие сверхзвуковых ячеек как в струе, так и в пламени, но в ситуации отрыва пламени от среза сопла. Это детально продемонстрировано в работе [6; 8] при поджигании круглой микроструи водорода вдали от среза сопла. В данной ситуации можно было наблюдать наличие сверхзвуковых ячеек как в струе, так и в оторвавшемся от среза сопла пламени.

В работе [9] впервые представлены результаты экспериментальных исследований диффузионного горения плоской микроструи водорода на сверхзвуковой скорости ее истечения как по воздуху, так и по водороду. Результаты экспериментальных и численных исследований горения круглых струй водорода при дозвуковых и сверхзвуковых скоростях их истечения детально представлены в работах [10–12].

Цель настоящей работы состоит в экспериментальных исследованиях особенностей диффузионного горения круглых микроструй водорода, истекающих из микросопел с различным диаметром выходного отверстия. Особое внимание будет уделено исследованию характеристик развития данных микроструй на сверхзвуковых (относительно воздуха  $U_0 = 331$  м/с и водорода  $U_0 = 1284$  м/с) скоростях их истечения и при наличии сверхзвуковых ячеек. Будет проведено сравнение результатов исследования с результатами, представленными в работах [10–12].

### Экспериментальное оборудование и процедура исследования

На рис. 1 представлена схема эксперимента. В установку соплового аппарата (*a*) через блок управления электромагнитным клапаном типа 179В фирмы *MKS Instruments* объемного расхода газа (*b*), обеспечивающий точность измерения расхода газа в пределах 0,7 %, подавался водород из баллона (*c*) под давлением 100 атм. через редуктор (*d*). Управление расходом газа осуществлялось блоком управления, а показания расхо-

да водорода регистрировались на электронном табло (см. *b*). В эксперименте водород поступал в установку соплового аппарата (*a*), состоящую из форкамеры (1) с набором детурбулизирующих сеток (2), хонейкомба (3), и далее через цилиндрический микроканал длиной 200 мм в круглое сопло с размерами диаметра его выходного отверстия, указанными на рис. 1.

Процедура проведения исследований состояла из непосредственной видеосъемки процесса диффузионного горения микроструи водорода и видеосъемки теневой картины данного процесса (теневой метод Тёплера на базе ИАБ-451) также с помощью цифровой видеокамеры *Olympus SZ-17* с разрешением 12 МП.

Скорость истечения водорода ( $U_0$ , м/с) на выходе круглого сопла определялась по формуле  $U_0 = Q/S$ , где  $Q$ , см<sup>3</sup>/с – расход газа, измеряемый прецизионным расходомером (*b*), а  $S$ , см<sup>2</sup> – площадь выходного отверстия сопла. Следует заметить, что определение скорости истечения водорода из сопла таким способом на сверхзвуке не совсем корректно, поскольку не учитывается целый ряд параметров, в том числе сжимаемость газа. В данной ситуации был использован еще один метод определения скорости истечения микроструи по разности давления ( $\Delta P$ , кгс/м<sup>2</sup>) на входе ( $P_{\text{редуктор}}$ ) и выходе ( $P_{\text{атмосфера}}$ ) водорода из сопла ( $\Delta P = P_{\text{редуктор}} - P_{\text{атмосфера}}$ ). При этом  $U_0$ , м/с =  $\sqrt{2\Delta P/\rho}$ , где  $\rho$ , кг/м<sup>3</sup> – плотность водорода.

### Результаты экспериментов

*Диффузионное горение круглой струи водорода, истекающей из сопла с диаметром выходного отверстия  $d = 1,2$  мм*

На рис. 2 представлены фотографии пламени при диффузионном горении струи водорода, истекающей из круглого сопла с диаметром выходного отверстия  $d = 1,2$  мм в ситуации нарастания скорости ее истечения. При малой скорости ( $U_0 \leq 40$  м/с) истечения микроструи длина распространения ламинарного пламени достигает примерно 400 мм. С ростом скорости истечения микроструи можно наблюдать появление области перетяжки пламени и небольшое уменьшение длины распространения турбулентного пламени ( $h \approx 350$  мм). Дальнейший рост скоро-

сти истечения микроструи приводит к отрыву пламени от среза сопла и росту длины его распространения, превышающей  $h \approx 400$  мм при сверхзвуковом истечении микроструи по водороду ( $U_0 \geq 1284$  м/с).

Цель данного представления состоит в том, чтобы показать процесс распространения пламени в пространстве, акцентируя внимание на достаточно большой его длине (почти до полуметра), несмотря на малый диаметр отверстия выходного сопла. Тем не менее, основное внимание необходимо уделить рассмотрению области горения струи вблизи ее выхода из сопла. Более детально рассмотреть данную область можно с помощью теневого метода исследования, позволяющего наблюдать ключевые структурные особенности диффузионного горения микроструи водорода по причине их зависимости от изменения градиента плотности газа как при его горении, так и без горения.

На рис. 3 представлены теневые картины пламени при нарастании скорости  $U_0$  ( $Q$  объемного расхода) истечения водорода. Можно наблюдать процесс возникновения области перетяжки пламени с ламинарной струей и ламинарным пламенем сферической формы в ней, уменьшение пространственного размера области перетяжки пламени с ростом скорости истечения струи водорода. Далее, с ростом скорости струи, турбулентное пламя отрывается от области перетяжки пламени, и, наконец, можно наблюдать исчезновение данной области с ростом величины отрыва пламени ( $h \approx 1,5$  см) от среза сопла при  $U_0 = 654$  м/с.

На рис. 4 представлены теневые картины пламени при уменьшении скорости  $U_0$  ( $Q$  объемного расхода) истечения водорода (картины *a–e*) и нарастании скорости истечения водорода (картины *f–m*).

Можно наблюдать процесс отрыва пламени от среза сопла при поджигании струи водорода вдали от него. С уменьшением скорости истечения струи величина отрыва пламени остается, примерно, одинаковой ( $h \approx 3$  мм) в диапазоне скорости струи ( $U_0 = 648 \div 368$  м/с). При  $U_0 = 325$  м/с можно наблюдать присоединение пламени к срезу сопла и возникновение области перетяжки пламени. С другой стороны, в ситуации поджигания микроструи водорода вблизи среза сопла при скорости ее истечения ( $U_0 = 325$  м/с) и в случае увеличения скорости истечения струи можно наблюдать динами-



Рис. 2. Фотографии пламени при диффузионном горении микроструи водорода, истекающей из круглого ( $d = 1,2$  мм) сопла в ситуации нарастания скорости ее истечения:  $a-h$  – от 40 до 1340 м/с

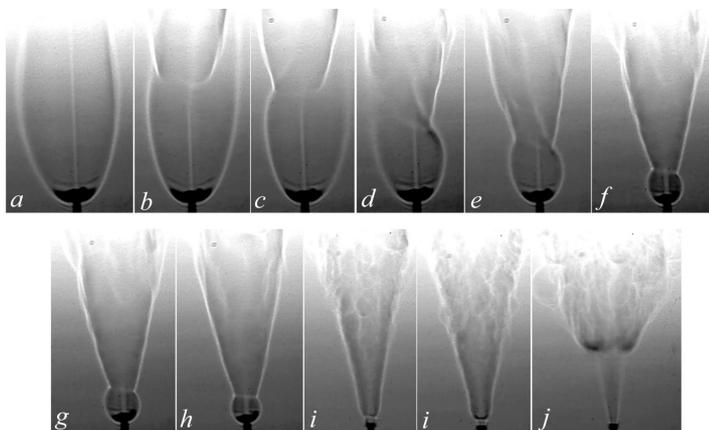


Рис. 3. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из круглого сопла ( $d = 1,2$  мм) с ростом скорости (объемного расхода) ее истечения ( $U_0$ , м/с ( $Q$ , см<sup>3</sup>/с)):  $a - 91$  (100);  $b - 148$  (163);  $c - 182$  (200);  $d - 200$  (220);  $e - 227$  (250);  $f - 245$  (270);  $g - 259$  (285),  $h - 327$  (360);  $i - 654$  (720);  $j - 982$  (1080) (отрыв пламени 1,5 см)

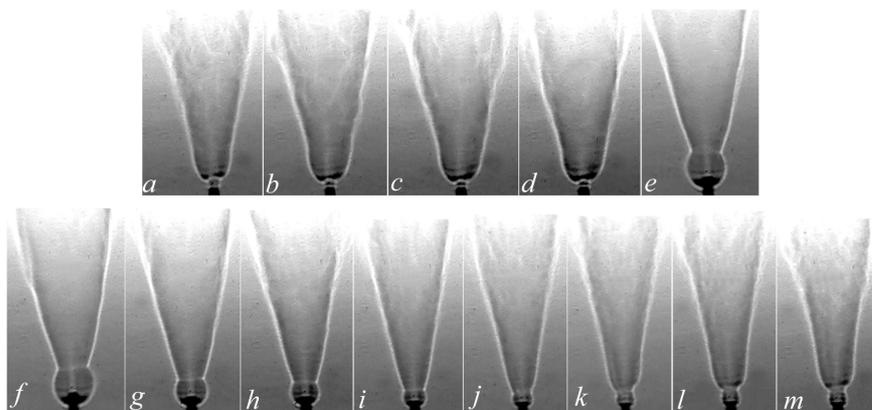


Рис. 4. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из круглого микросопла ( $d = 1,2$  мм,  $S = 0,011$  см<sup>2</sup>) с падением скорости ее истечения ( $U_0$ , м/с ( $Q$ , см<sup>3</sup>/с)):  $a - 648$  (713);  $b - 474$  (521);  $c - 421$  (463);  $d - 368$  (405);  $e - 325$  (357) (отрыв пламени  $\approx 3$  мм) и с ростом скорости ее истечения:  $f - 325$  (357);  $g - 337$  (371);  $h - 412$  (453);  $i - 526$  (579);  $j - 559$  (615);  $k - 631$  (694);  $l - 737$  (811);  $m - 742$  (816) (отрыв пламени от области перетяжки пламени  $\approx 3$  мм)

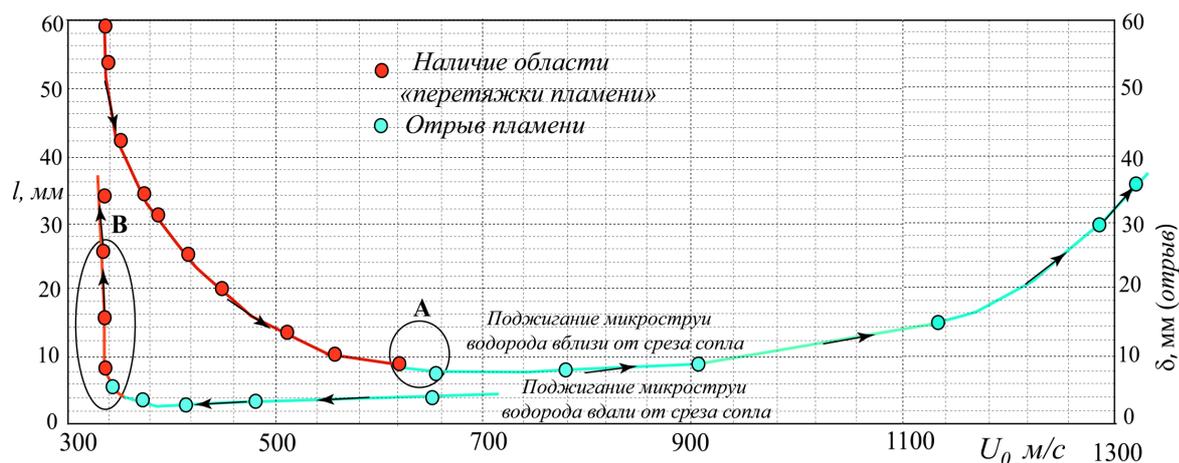


Рис. 5. График (гистерезис) зависимости процесса развития пламени микроструи водорода в зависимости от скорости ее истечения и способа поджигания (вблизи / вдали от среза сопла), диапазон скорости исчезновения области перетяжки пламени и начало отрыва пламени (А) и диапазон скорости прекращения отрыва пламени и появления области перетяжки пламени (В). Стрелками указано направление изменения скорости микроструи (повышение / уменьшение)

ку трансформации формы и размера «области перетяжки пламени» с сохранением ее существования до больших скоростей ( $U_0 = 737$  м/с) истечения струи водорода, даже при наличии отрыва от нее области турбулентного пламени.

*Гистерезис процесса развития и исчезновения области перетяжки пламени в зависимости от способа поджигания круглой струи водорода (вдали / вблизи от среза сопла) и при снижении или нарастании скорости ее истечения*

На рис. 5 представлен график процесса развития и исчезновения области перетяжки пламени в зависимости от снижения или нарастания скорости истечения круглой струи водорода. График ясно демонстрирует наличие гистерезиса в данном процессе. При поджигании струи вблизи среза сопла область перетяжки пламени, нагревая выход сопла, дает возможность существования данной области до момента ее исчезновения и возникновения отрыва пламени на достаточно большой скорости истечения микроструи ( $U_0 \approx 680$  м/с). Однако при снижении скорости истечения струи процесс инверсии отрыва пламени на его присоединении с появлением области перетяжки пламени происходит при  $U_0 \approx 325$  м/с, что коррелирует с

ситуацией, наблюдаемой при поджигании микроструи водорода вдали от среза сопла.

Таким образом, в данном случае можно наблюдать гистерезисный цикл.

*Полуцикл А.* Наличие области перетяжки пламени, ее исчезновение и отрыв пламени при поджигании струи вблизи среза сопла и нарастании скорости ее истечения (позиция А).

*Полуцикл В.* Процесс инверсии от отодравшегося пламени к его присоединению и возникновению области перетяжки пламени при уменьшении скорости истечения струи в ситуации ее поджигания вдали от среза сопла (позиция В).

Данный факт коррелирует с результатами аналогичных исследования диффузионного горения плоской микроструи водорода [9].

*Сверхзвуковое диффузионное горение круглой струи водорода*

Остановимся на одном важном наблюдении, связанном с фактом прекращения горения водородной микроструи либо его продолжением при сверхзвуковой скорости истечения микроструи. На рис. 6 представлены теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из микросопла с диаметром выходного отверстия  $d = 0,5$  мм [1]. Как показали исследования (рис. 6), срыв пламени и прекращение

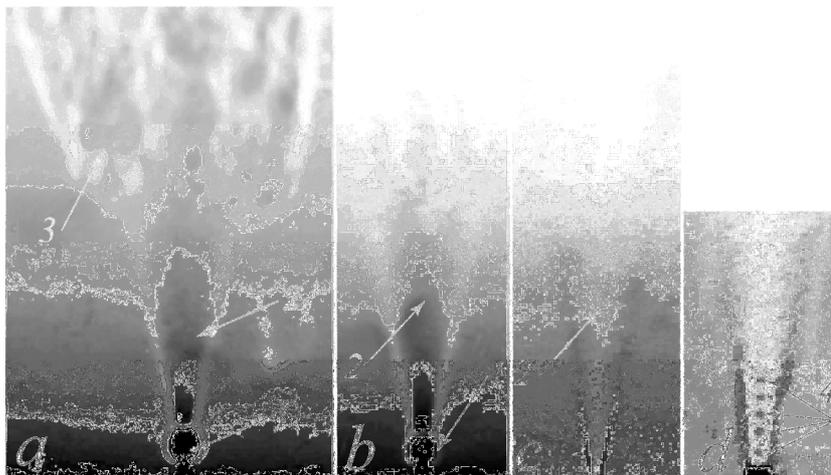


Рис. 6. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из круглого микросопла с диаметром выходного отверстия  $d = 0,5$  мм на различной скорости ( $U_0$ , м/с):  $a - 663$ ,  $b - 765$ ,  $c$  – сверхзвуковая скорость ( $M > 1$ ,  $U_0 \geq 1284$  м/с),  $d$  – увеличенная область вблизи выхода микросопла с наличием сверхзвуковых ячеек. Обозначения: 1 – область перетяжки пламени; 2 – турбулентная микроструя; 3 – пламя; 4 – сверхзвуковые ячейки

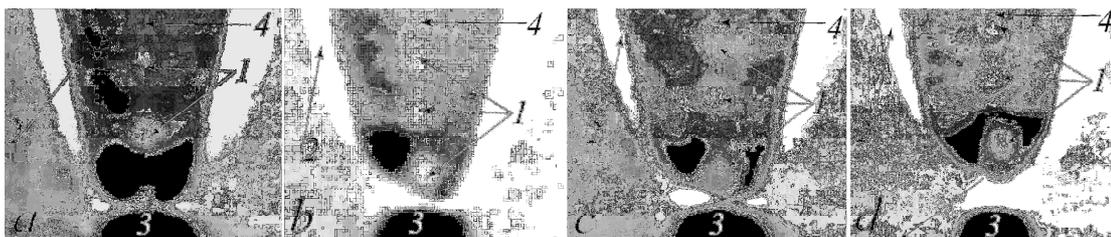


Рис. 7. Теневые картины сверхзвукового горения микроструи водорода с оторвавшимся от среза сопла пламенем и наличием сверхзвуковых ячеек на микроструе: 1 – сверхзвуковые ячейки; 2 – пламя; 3 – микросопло Лавала; 4 – микроструя. Ситуация различного объемного расхода ( $Q$ , см<sup>3</sup>/с) водорода:  $a - 140$ ;  $b - 141$ ;  $c - 144$ ;  $d - 151$  (взято из работы [13])

горения микроструи происходило при достижении сверхзвуковой скорости ее истечения. Однако, несмотря на отсутствие горения, скорость истечения микроструи была сверхзвуковой, на что указывает наличие сверхзвуковых ячеек. Таким образом, диффузионного горения круглой микроструи водорода ( $d = 0,5$  мм,  $S = 0,2$  мм<sup>2</sup>) на сверхзвуковой скорости по водороду ( $U_0 \geq 1284$  м/с) не наблюдалось. С другой стороны, диффузионное горение плоской микроструи водорода ( $S \approx 0,9$  мм<sup>2</sup>) на сверхзвуковой скорости по водороду ( $U_0 \geq 1284$  м/с) можно было наблюдать, но при наличии оторвавшегося от среза сопла пламени [9].

Следует также отметить, что при горении круглой микроструи водорода, истекающей из тонкостенного микросопла Лавала (диаметр выходного отверстия и горла сопла  $d =$

$= 2$ ;  $0,45$  мм соответственно) наблюдался небольшой отрыв пламени от среза сопла ( $h \approx 1-3$  мм) при наличии сверхзвуковых ячеек сверхзвукового горения микроструи относительно воздуха ( $U_0 \geq 330$  м/с). На рис. 7, взятом из работы [13], можно ясно видеть данную ситуацию.

Таким образом, можно констатировать, что одна из ряда причин, обеспечивающих сверхзвуковое горение микроструи водорода, связана с размером, в частности с размером площади выходного отверстия (щели) микросопла. Продемонстрировано, что при диаметре (площади)  $d = 0,5$  мм, ( $S = 0,2$  мм<sup>2</sup>) выходного отверстия сопла наблюдается срыв пламени и отсутствие горения микроструи. С другой стороны, наблюдалось стабильное сверхзвуковое горение как плоской ( $S = 0,2$  мм<sup>2</sup>) [9], так и круглой ( $S \approx 3$  мм<sup>2</sup>)

[13] струи водорода с оторвавшимся от среза сопла пламенем, но с размером площади выходного отверстия (щели), более чем в четыре раза превышающем аналогичный параметр у круглой микроструи с диаметром выходного отверстия  $d = 0,5$  мм ( $S = 0,2$  мм<sup>2</sup>). По-видимому, есть определенные границы, связанные с размерами микросопел, при которых реализуется сверхзвуковое горение микроструй. Рассмотрим более детально данное предположение.

*Сверхзвуковое диффузионное горение круглой струи водорода, истекающей из сопла с диаметром выходного отверстия  $d = 1,2$  мм*

На рис. 8 показаны профили средней ( $U$ ) и пульсационной ( $u'$ ) составляющих скорости при истечении круглой микроструи из микросопла [14]. По причине большого удлинения микросопла  $l/d \approx 170$ , где  $l$  (200 мм) – длина

микросопла,  $d$  (1,2 мм) – диаметр выходного отверстия микросопла, профиль скорости на срезе сопла имеет параболическую форму [14]. В процессе исследований измерялась среднерасходная скорость  $U_0 = Q/S$ , которая примерно в 1,2–1,3 раза меньше максимальной скорости на оси микросопла (см. рис. 8).

На рис. 9 представлены теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из круглого микросопла при сверхзвуковой скорости по водороду ( $U_0 \approx 1284$  м/с). Можно наблюдать наличие сверхзвуковых ячеек.  $U_0 = \sqrt{2\Delta P/\rho}$ , где  $\Delta P = 4; 4,5$  атм. = 40000; 45000 кгс/м<sup>2</sup> – перепад давления на входе и выходе из микросопла, а  $\rho_{\text{водород}} = 0,09$  кг/м<sup>3</sup> плотность водорода,  $U_0 = \sqrt{80000; 90000/0,09} = 942; 1000$  м/с. Учитывая, что  $U_0 = 942; 1000$  м/с – среднерасходная скорость микроструи, а профиль скорости параболический, максимальная скорость достигает скорости звука по водороду  $U_0 \approx 1225; 1300$  м/с.

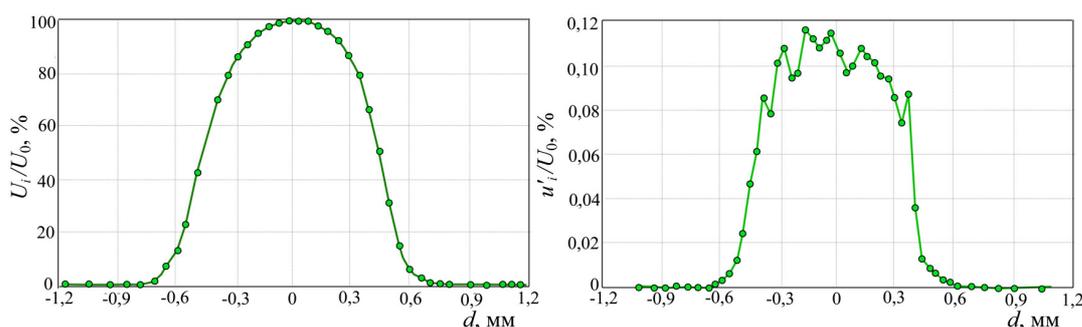


Рис. 8. Профили средней ( $U_i$ ) и пульсационной ( $u'_i$ ) составляющих скорости на срезе круглого микросопла ( $d \approx 1,2$  мм)

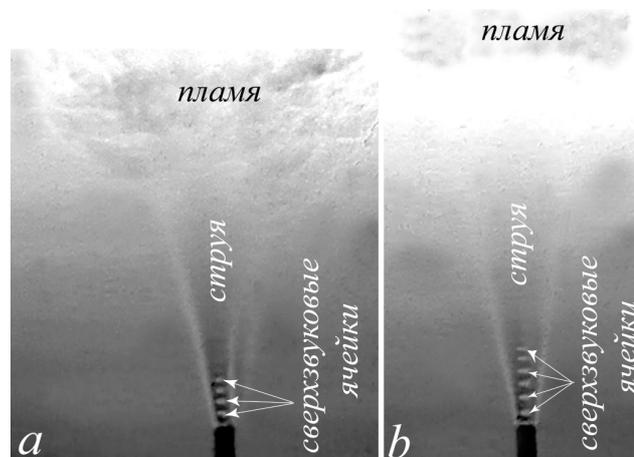


Рис. 9. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из круглого микросопла ( $d = 1,2$  мм,  $S = 1,1$  мм<sup>2</sup>) на сверхзвуковой скорости (по водороду):  $U_0 \approx 1225$  м/с (а) и  $U_0 \approx 1300$  м/с (б), величина отрыва пламени  $h \approx 30$ (а), 35(б) мм соответственно

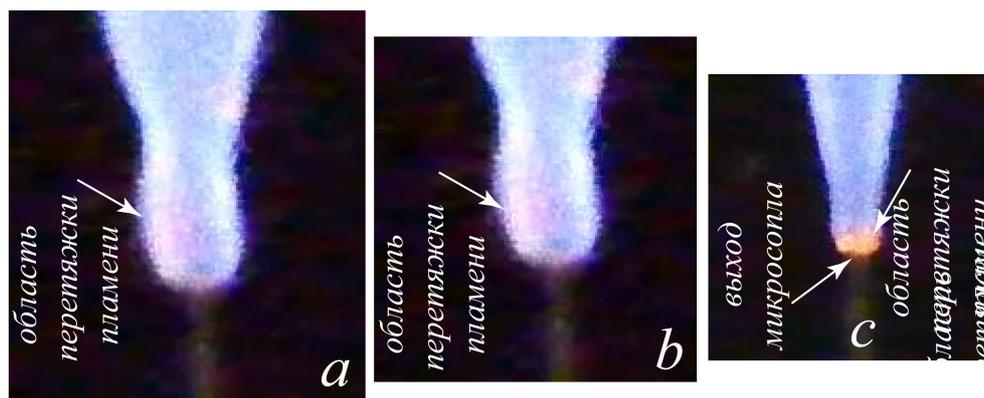


Рис. 10. Фотографии, демонстрирующие нагрев выхода микросопла от области перетяжки пламени при диффузионном горении микроструи водорода, истекающей из круглого микросопла ( $d = 1,2$  мм), изменение размера и формы области перетяжки пламени с ростом скорости истечения микроструи



Рис. 11. Фотографии пламени при диффузионном горении микроструи водорода, истекающей из круглого ( $d = 1,5$  мм) сопла в ситуации нарастания скорости ее истечения от 40 до 1340 м/с

На рис. 10 показаны теневые картины нагрева выхода сопла ( $d = 1,2$  мм) от области перетяжки пламени с ростом скорости истечения струи водорода. Область перетяжки пламени, охватывая выход сопла, нагревает его до температуры примерно  $t = 800 \div 1000$  °С, что видно по красному цвету (см. работу [14]) внутри данной области и на выходе сопла. Данный факт в ситуации нагрева выхода толстостенного микросопла [5] привел к его заклиниванию при наличии области перетяжки пламени до трансзвуковых скоростей истечения микроструи, не давая возможности горения микроструи на сверхзвуковой скорости. Однако в ситуации нагрева выхода тонкостенного микросопла [13], как

и в нашем случае, область перетяжки пламени исчезала, происходил отрыв пламени от среза сопла и скорость истечения микроструи имела возможность выходить на сверхзвуковую.

*Диффузионное горение круглой струи водорода, истекающей из сопла с диаметром выходного отверстия  $d = 1,5$  мм*

На рис. 11 представлены фотографии пламени при диффузионном горении струи водорода, истекающей из круглого сопла с диаметром выходного отверстия  $d = 1,5$  мм

в ситуации нарастания скорости ее истечения. При малой скорости ( $U_0 \leq 40$  м/с) истечения микроструи длина распространения ламинарного пламени достигает примерно 500 мм. С ростом скорости истечения микроструи можно наблюдать появление области перетяжки пламени. Дальнейший рост скорости истечения микроструи приводит к отрыву пламени от среза сопла и росту длины его распространения, превышающей  $h \approx 700$  мм при сверхзвуковом истечении микроструи по водороду ( $U_0 \geq 1284$  м/с).

Цель данного представления состоит в том, чтобы показать процесс распространения пламени в пространстве, акцентируя внимание на достаточно большую его длину (более 700 мм), несмотря на малый диаметр отверстия выходного сопла  $d = 1,5$  мм. Тем не менее, основное внимание необходимо уделить рассмотрению области горения струи вблизи ее выхода из сопла. Более детально рассмотреть данную область можно с помощью теневого метода исследования, позволяющего наблюдать ключевые струк-

турные особенности диффузионного горения микроструи водорода по причине их зависимости от изменений градиента плотности газа как при его горении, так и без горения.

На рис. 12 представлены теньевые картины пламени при горении круглой струи водорода и нарастании скорости ее истечения  $U_0 = \sqrt{2\Delta P/\rho}$ . Можно наблюдать наличие области перетяжки пламени с ламинарной струей и ламинарным пламенем сферической формы. Далее, с ростом скорости струи, можно наблюдать отрыв пламени от среза сопла:  $h \approx 1,5$  мм при  $U_0 \approx 654$  м/с,  $h \approx 17-20$  мм при  $U_0 \approx 1170$  м/с и  $h \approx 20-23$  мм при  $U_0 \approx 1270$  м/с.

На рис. 13 представлены теньевые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из круглого сопла при сверхзвуковой скорости по водороду. Можно наблюдать наличие сверхзвуковых ячеек. Максимальная скорость достигает скорости звука по водороду  $U_0 \approx 1230(a)$  и  $1300(b)$  м/с.

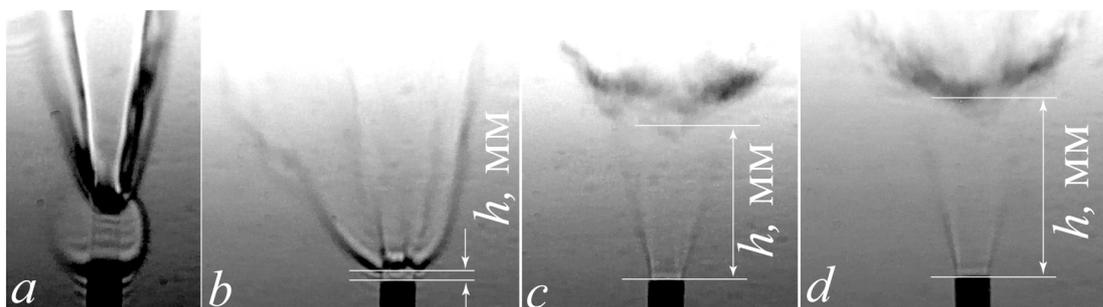


Рис. 12. Теньевые картины пламени при диффузионном горении круглой микроструи водорода при различной скорости ее истечения:  $a - U_0 = 278$  м/с (область перетяжки пламени),  $b - U_0 \approx 389$  м/с (начало отрыва пламени,  $h \approx 1,5$  мм),  $c - U_0 \approx 1170$  м/с ( $h \approx 17-20$  мм),  $d - U_0 \approx 1270$  м/с ( $h \approx 20-23$  мм)

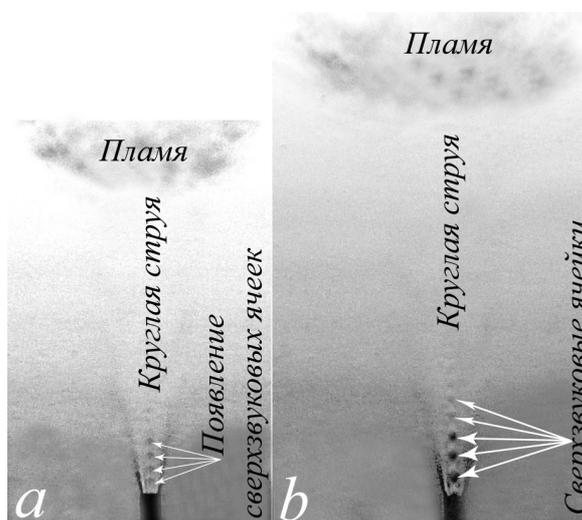


Рис. 13. Теньевые картины диффузионного горения круглой микроструи водорода, истекающей из круглого сопла  $d = 1,5$  мм, при различной скорости ее истечения:  $a - U_0 \approx 1230$  м/с,  $b - U_0 > 1284$  м/с. Можно наблюдать возникновение сверхзвуковых ячеек, стабилизирующих процесс горения на сверхзвуковой скорости истечения микроструи. Отрыв пламени от среза сопла:  $a - h \approx 30$  мм,  $b - h \approx 42$  мм

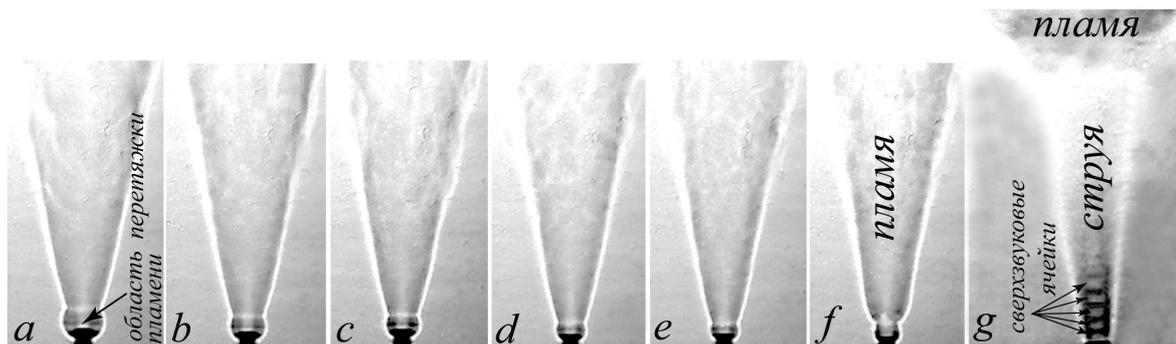


Рис. 14. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из круглого микросопла ( $d = 1,5$  мм,  $S = 1,8$  мм<sup>2</sup>) с увеличением скорости ее истечения ( $U_0$ , м/с):  $a - 280$ ;  $b - 330$ ;  $c - 360$ ;  $d - 425$ ;  $e - 460$ ;  $f - 545$ ;  $g - 1340$ , поджигание струи водорода вблизи среза сопла

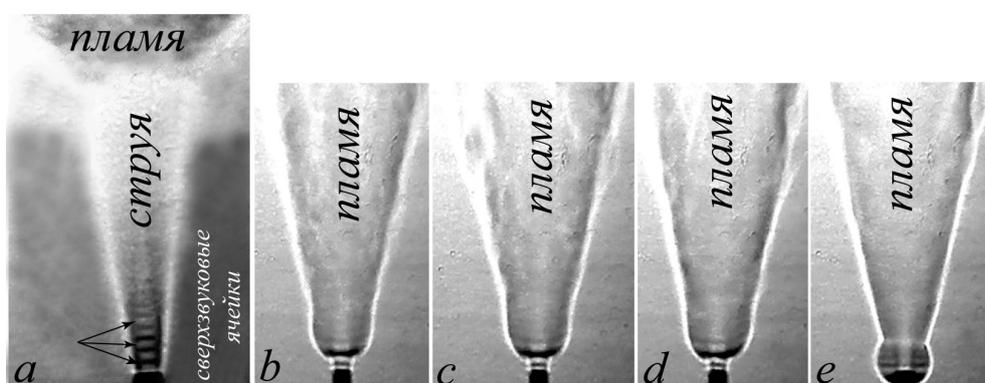


Рис. 15. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из круглого микросопла ( $d = 1,5$  мм,  $S = 1,8$  мм<sup>2</sup>) с уменьшением скорости ее истечения ( $U_0$ , м/с):  $a - 1340$ ;  $b - 360$ ;  $c - 325$ ;  $d - 280$ ;  $e - 230$ , поджигание струи водорода вдали от среза сопла



Рис. 16. Фотографии пламени при диффузионном горении микроструи водорода, истекающей из круглого ( $d = 2,7$  мм) сопла в ситуации нарастания скорости ее истечения:  $a-g$  – от 40 до 1340 м/с

На рис. 14 представлены теневые картины пламени при горении круглой струи водорода и нарастании скорости ее истечения вплоть до сверхзвуковой  $U_0 = \sqrt{2\Delta P/\rho} = 1340$  м/с. Можно наблюдать процесс возникновения области перетяжки пламени с ламинарной струей и ламинарным пламенем сферической формы в ней и уменьшение пространственного размера области перетяжки пламени с ростом скорости истечения струи водорода. Далее, с ростом скорости струи, турбулентное пламя отрывается от области перетяжки пламени, и, наконец, можно наблюдать исчезновение данной области, отрыв пламени от среза сопла и рост величины отрыва пламени до  $h \approx 4$  см с появлением сверхзвуковых ячеек при  $U_0 = 1340$  м/с.

На рис. 15 представлены теневые картины пламени при горении круглой струи водорода и уменьшении скорости ее истечения ( $U_0 = \sqrt{2\Delta P/\rho} = 1340$  м/с) вплоть до появления области перетяжки пламени.

Таким образом, как и в случае, описанном выше (см. рис 5), в данной ситуации также можно наблюдать гистерезисный цикл.

*Полуцикл А.* Наличие области перетяжки пламени, ее исчезновение и отрыв пламени при поджигании струи вблизи среза сопла и нарастании скорости ее истечения (позиция **A** –  $U_0 \approx 550$  м/с).

*Полуцикл В.* Процесс инверсии от оторвавшегося пламени к его присоединению и возникновению области перетяжки пламени при уменьшении скорости истечения струи в ситуации ее поджигания вдали от среза сопла (позиция **B** –  $U_0 \approx 300$  м/с).

*Диффузионное горение круглой струи водорода, истекающей из сопла с диаметром выходного отверстия  $d = 2,7$  мм*

На рис. 16 представлены фотографии пламени при диффузионном горении струи водорода, истекающей из круглого сопла с диаметром выходного отверстия  $d = 2,7$  мм в ситуации нарастания скорости ее истечения. При малой скорости ( $U_0 \leq 40$  м/с) истечения микроструи длина распространения ламинарного пламени достигает примерно 400 мм. С ростом скорости истечения микроструи можно наблюдать появление облас-

ти перетяжки пламени. Дальнейший рост скорости истечения микроструи приводит к отрыву пламени от среза сопла и росту длины его распространения, превышающей  $h \approx 700$  мм при сверхзвуковом истечении микроструи по водороду ( $U_0 \geq 1284$  м/с).

Цель данного представления, как и в предыдущих случаях, состоит в том, чтобы показать процесс распространения пламени в пространстве, акцентируя внимание на достаточно большой его длине (порядка 700 мм), несмотря на малый диаметр отверстия выходного сопла  $d = 2,7$  мм. Тем не менее, основное внимание необходимо уделить рассмотрению области горения струи вблизи ее выхода из сопла. Более детально рассмотреть данную область дает возможность теневой метод исследования, позволяющий наблюдать ключевые структурные особенности диффузионного горения микроструи водорода по причине их зависимости от изменений градиента плотности газа как при его горении, так и без горения.

На рис. 17 представлены теневые картины пламени при горении круглой струи водорода и нарастании скорости ее истечения вплоть до сверхзвуковой  $U_0 = \sqrt{2\Delta P/\rho} = 1340$  м/с.

Можно наблюдать наличие области перетяжки пламени с ламинарной струей и ламинарным пламенем сферической формы. Далее, с ростом скорости струи, можно наблюдать уменьшение размера области перетяжки пламени и отрыв пламени от среза сопла:  $h \approx 3$  мм при  $U_0 \approx 350$  м/с,  $h \approx 20$  мм при  $U_0 \approx 1170$  м/с и  $h \approx 40$  мм при  $U_0 \approx 1340$  м/с.

Таким образом, как показано выше, при диаметре (площади)  $d = 0,5$  мм ( $S = 0,2$  мм<sup>2</sup>) выходного отверстия круглого сопла наблюдается срыв пламени и отсутствие горения микроструи водорода. С другой стороны, наблюдалось стабильное сверхзвуковое горение как плоской ( $S = 0,9$  мм<sup>2</sup>) [9], так и круглой ( $S \approx 3$  мм<sup>2</sup>) [13] струи водорода с оторвавшимся от среза сопла пламенем, но с размером площади выходного отверстия (щели), более чем в четыре раза превышающем аналогичный параметр у круглой микроструи с диаметром выходного отверстия  $d = 0,5$  мм ( $S = 0,2$  мм<sup>2</sup>). Результаты настоящих экспериментальных исследований диффузионного горения круглой струи водорода, истекающей из круглых сопел с диаметром выходного отверстия сопла  $d = 1,2; 1,5; 2,7$  мм и площадью поперечного

сечения выхода сопла  $S = 1,1; 1,8; 5,7 \text{ мм}^2$ , соответственно, демонстрируют процесс сверхзвукового диффузионного горения с наличием сверхзвуковых ячеек, стабилизирующих горение, на скорости истечения струи, превышающей скорость звука по водороду ( $U_0 \geq 1284 \text{ м/с}$ ). Данный результат исследований коррелирует с результатами исследования диффузионного сверхзвукового горения плоской микроструи водорода, представленными впервые в работе [9]. Из этого можно сделать вывод, что сверхзвуковое диффузионное горение круглых микроструй водорода на скорости их истечения, превышающей сверхзвуковую скорость водорода, возможно при диаметре выходного отверстия микросопла, находящегося в пределах 1 мм и выше.

Таким образом, представленные результаты экспериментов указывают на то, что существует четыре основных сценария

диффузионного горения круглой микроструи водорода, как и для плоской [9], в зависимости от скорости ее истечения. Это следующие сценарии (рис. 18). Ламинарное горение при наличии ламинарной микроструи и ламинарного пламени (рис. 18, *a*,  $U_0 \leq 150 \text{ м/с}$ ). Возникновение и развитие области перетяжки пламени с ламинарной микроструей и пламенем сферической формы, наличием узкой области градиента плотности газа, преодолевая которую микроструя и пламя становятся турбулентными (рис. 18, *b*,  $U_0 \geq 150 \text{ м/с}$ ). Исчезновение области перетяжки пламени, отрыв пламени от среза сопла и сверхзвуковое горение микроструи относительно скорости звука в воздухе (рис. 18, *c*,  $U_0 \geq 330 \text{ м/с}$ ). Нарастание величины отрыва пламени от среза сопла и сверхзвуковое горение микроструи относительно скорости звука в водороде (рис. 18, *d*,  $U_0 \geq 1280 \text{ м/с}$ ).

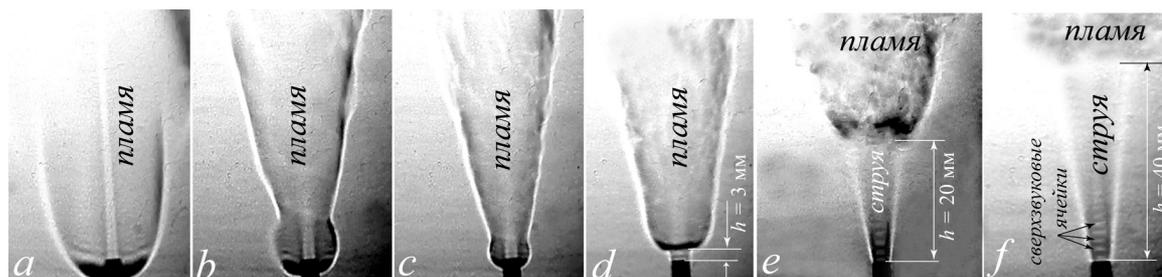


Рис. 17. Теневые картины диффузионного горения микроструи водорода, истекающей из круглого микросопла ( $d = 2,7 \text{ мм}$ ,  $S \approx 6 \text{ мм}^2$ ) при различной скорости истечения ( $U_0$ , м/с): *a* – 52; *b* – 126; *c* – 189; *d* – 350 (отрыв пламени  $\approx 3 \text{ мм}$ ); *e* – 1240 (отрыв пламени  $\approx 20 \text{ мм}$ ); *f* – 1340 (отрыв пламени  $40 \text{ мм}$ )

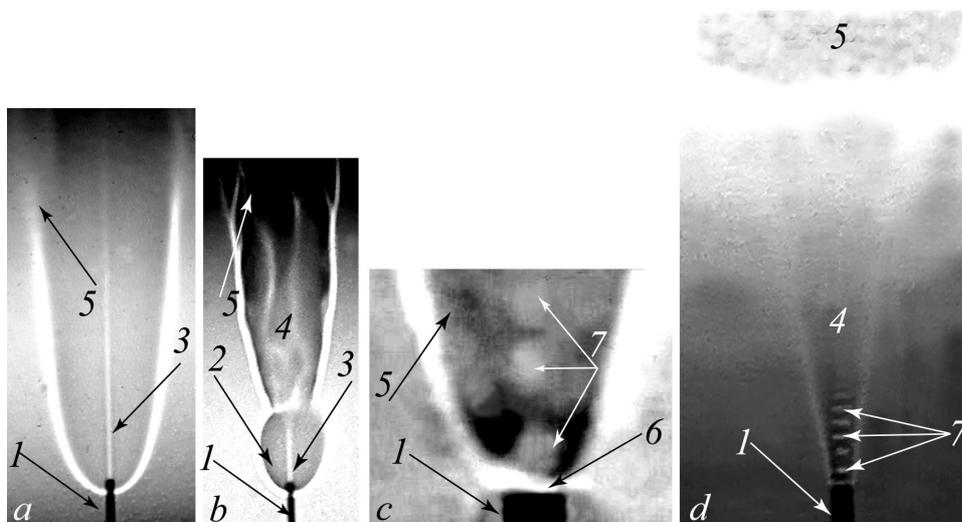
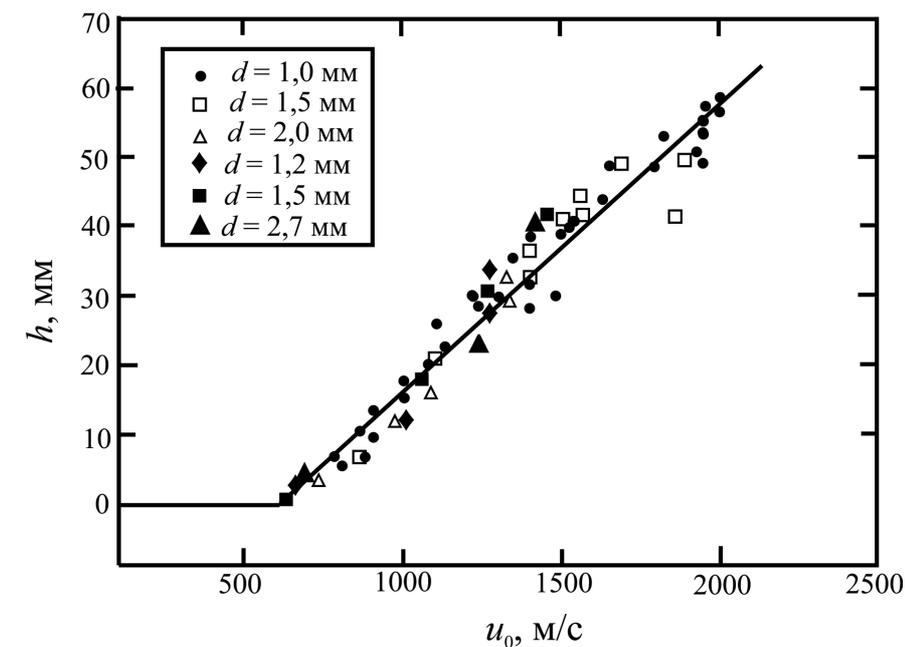
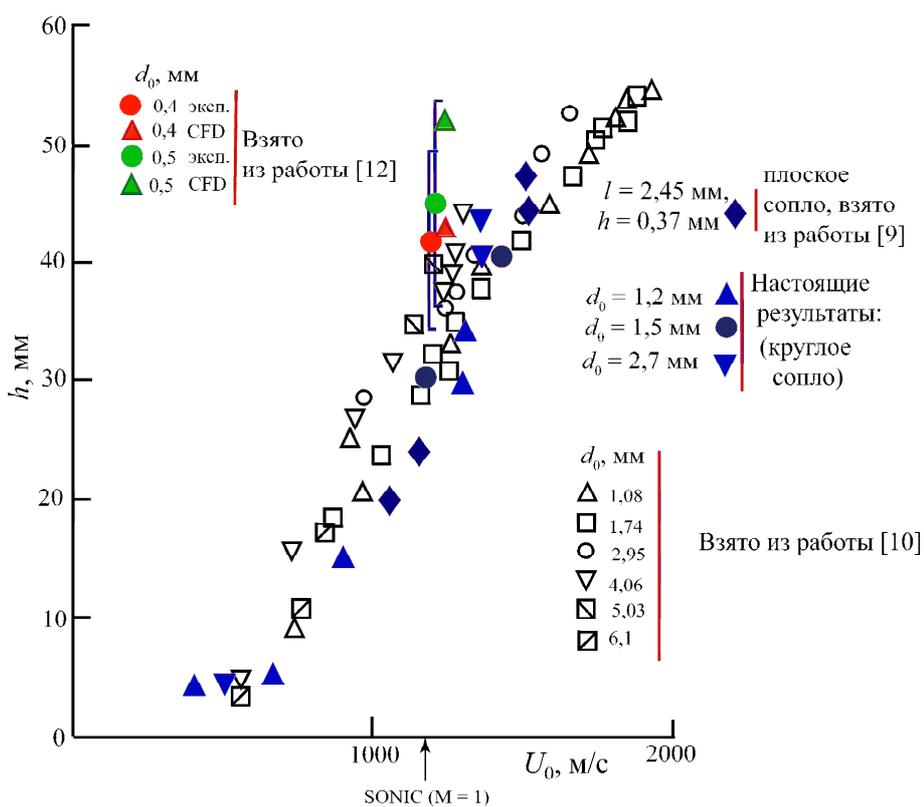


Рис. 18. Теневые картины четырех сценариев диффузионного горения плоской микроструи водорода в зависимости от скорости ее истечения (*a* –  $U_0 \leq 150 \text{ м/с}$ ; *b* –  $U_0 \geq 150 \text{ м/с}$ ; *c* –  $U_0 \geq 330 \text{ м/с}$ ; *d* –  $U_0 \geq 1280 \text{ м/с}$ ): 1 – микросопло, 2 – область перетяжки пламени, 3 – ламинарная микроструя, 4 – турбулентная микроструя, 5 – пламя, 6 – отрыв пламени, 7 – сверхзвуковые ячейки



а



б

Рис. 19. График зависимости величины отрыва пламени от скорости истечения круглых микроструй водорода при их диффузионном горении: а – по данным работы [11] (•, □, Δ) и настоящего исследования (♦, ■, ▲); б – по данным работ [9; 10; 12] и настоящего исследования

Результаты экспериментальных и численных исследований горения круглых струй во-

дорода при дозвуковых и сверхзвуковых скоростях их истечения детально представ-

лены в работах [10–12]. На рис. 19, *a* приведен график зависимости отрыва диффузионного пламени круглой микроструи водорода от скорости ее истечения по данным работы [11]. Видно, что зависимость линейная. Максимальная скорость, которую достигали авторы при  $d = 1$  мм, более чем в 1,5 раза превышает скорость звука в водороде, и с увеличением диаметра выходного отверстия сопла эта скорость уменьшалась, но, тем не менее, превышала скорость звука в водороде.

Следует заметить, что авторы работы [11] не приводят картин теневой визуализации течений, хотя они такие исследования проводили. Наблюдали ли они наличие сверхзвуковых ячеек в процессе горения струй на сверхзвуковой скорости, нигде не отмечено. Результаты экспериментальных исследований зависимости величины отрыва пламени от скорости при диффузионном горении круглых микроструи, полученные в данной работе, также нанесены на график (см. рис. 19, *a*). Видно хорошее совпадение наших экспериментальных данных с представленной зависимостью из работы [11]. Однако в отличие от данных работы [11] наши результаты исследования, указывающие на сверхзвуковое горение плоской микроструи, подкреплены одной из важных характеристик такого процесса, а именно наличием сверхзвуковых ячеек.

В презентации [12] представлены результаты экспериментов и численного моделирования (CFD) процесса горения недорасширенных водородных струй при сверхзвуковой скорости их истечения. Показано, что моделирование формы приподнятого пламени и высоты его отрыва коррелирует с результатами физического эксперимента. Обнаружено, что воспламенение круглой водородной микроструи ( $d = 0,3$  мм) не происходит, а при ( $d = 0,5$  мм) микроструя воспламенялась. Детально результаты исследований представлены в работе [10], где на график (рис. 19, *b*) нанесены данные эксперимента и численных расчетов. Здесь же были представлены данные, полученные в работе [9], и данные настоящих экспериментов.

## Выводы

В результате экспериментальных исследований диффузионного горения круглых микроструи водорода впервые представлено

четыре сценария диффузионного горения круглых микроструи водорода, включая сверхзвуковое горение при наличии сверхзвуковых ячеек как по воздуху, так и по водороду. Установлено, что стабилизация дозвукового горения круглой микроструи водорода связана с наличием области перетяжки пламени, а стабилизация сверхзвукового горения микроструи – с наличием сверхзвуковых ячеек. Обнаружен гистерезис процесса диффузионного горения круглых микроструи водорода в зависимости от способа поджигания микроструи (вблизи или вдали от среза сопла) и направления изменения скорости ее истечения (роста или уменьшения). Установлено, что сверхзвуковое диффузионное горение круглых микроструи водорода (как по воздуху, так и по водороду) реализуется лишь в ситуации размера диаметра выходного микросопла в диапазоне 1 мм.

## Список литературы

1. Шмаков А. Г., Грек Г. Р., Козлов В. В., Коробейничев О. П., Литвиненко Ю. А. Различные режимы диффузионного горения круглой струи водорода в воздухе // Вестн. НГУ. Серия: Физика. 2015. Т. 10, вып. 2. С. 27–41.
2. Литвиненко Ю. А., Грек Г. Р., Козлов В. В., Коробейничев О. П., Шмаков А. Г. Структура присоединённого диффузионного пламени микроструи водорода, истекающей из щелевого сопла // Вестн. НГУ. Серия: Физика. 2015. Т. 10, вып. 2. С. 52–66.
3. Грек Г. Р., Катасонов М. М., Козлов Г. В., Литвиненко М. В. Диффузионное горение водорода (круглое скошенное сопло) // Вестн. НГУ. Серия: Физика. 2015. Т. 10, вып. 2. С. 42–51.
4. Kozlov V. V., Grek G. R., Korobeinichev O. P., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G. Combustion of a high-velocity hydrogen microjet effluxing in air // Doklady Physics. 2016. Vol. 61. Issue 9. P. 457–462.
5. Шмаков А. Г., Грек Г. Р., Козлов В. В., Козлов Г. В., Литвиненко Ю. А. Экспериментальное исследование диффузионного горения высокоскоростной круглой микроструи водорода. Часть 1. Присоединенное пламя, дозвуковое течение // Сибирский физический журнал. 2017. Т. 12, № 2. С. 28–45.
6. Kozlov V. V., Grek G. R., Kozlov G. V., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G. Experimental

study on diffusion combustion of high-speed hydrogen round microjets // *International Journal of Hydrogen Energy*. Elsevier, 2018.

7. Kozlov V. V., Grek G. R., Korobeinichev O. P., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G. Features of diffusion combustion of hydrogen in the round and plane high-speed microjets (Part II) // *International Journal of Hydrogen Energy*. Elsevier, 2016. Vol. 41. Issue 44. P. 20240–20249.

8. Козлов В. В., Грек Г. Р., Козлов Г. В., Литвиненко Ю. А., Шмаков А. Г. Экспериментальное исследование диффузионного горения круглой микроструи водорода при ее зажигании вдали от среза сопла // *Сибирский физический журнал*. 2017. Т. 12, № 3. С. 62–73.

9. Козлов В. В., Грек Г. Р., Литвиненко Ю. А., Шмаков А. Г., Вихорев В. В. Диффузионное горение плоской микроструи водорода, истекающей из щелевого микросопла на до- и сверхзвуковой скорости // *Сибирский физический журнал*. 2018. Т. 13, № 2. С. 23–36.

10. Kalghatgi G. T. Lift-off heights and visible lengths of vertical turbulent jet diffusion flames in still air // *Combust. Sci. Technol.*, 1984. Vol. 41. Issue 1-2. P. 14–29.

11. Аннушкин Ю. М., Свердлов Е. Д. Исследование устойчивости диффузионных затопленных пламен при дозвуковом и нерасчетном сверхзвуковом истечении газобразных топлив // *ФГВ*. 1977. Т. 14, № 5. С. 53–63.

12. Shentsov V., Sakatsume R., Makarov D., Takeno K., Molkov V. Lift-off and blow-out of under-expanded jets: experiments versus simulations // *8<sup>th</sup> International Seminar on Fire and Explosion*. Hefei, China, 2016.

13. Козлов В. В., Грек Г. Р., Литвиненко М. В., Литвиненко Ю. А., Шмаков А. Г. Экспериментальное исследование диффузионного горения высокоскоростной круглой микроструи водорода. Часть 2. Приподнятое пламя, сверхзвуковое течение // *Сибирский физический журнал*. 2017. Т. 12, № 2. С. 46–59.

14. Shmakov A. G., Grek G. R., Kozlov V. V., Litvinenko Yu. A. Influence of initial and boundary conditions at the nozzle exit upon diffusion combustion of a hydrogen microjet // *International Journal of Hydrogen Energy*. Elsevier, 2017. Vol. 42. Issue 24. P. 15913–15924.

*Материал поступил в редколлегию 15.03.2018*

V. V. Kozlov<sup>1,2</sup>, G. R. Grek<sup>1</sup>, Yu. A. Litvinenko<sup>1,2</sup>  
A. G. Shmakov<sup>2,3</sup>, V. V. Vikhorev<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> *Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS  
4/1 Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

<sup>2</sup> *Novosibirsk State University  
2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

<sup>3</sup> *Voevodsky Institute of Chemical Kinetics and Combustion SB RAS  
3 Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

*kozlov@itam.nsc.ru, grek@itam.nsc.ru  
litur@itam.nsc.ru, shmakov@kinetics.nsc.ru*

## **DIFFUSION COMBUSTION OF HYDROGEN ROUND MICROJET AT SUB- AND SUPERSONIC VELOCITY EFFLUX FROM NOZZLE**

The purpose of this work is experimental study of the round hydrogen jets diffusion combustion efflux from nozzles with different diameters of nozzle exit at sub- and supersonic velocity. As a result of the experimental studies the following results are received. Four scenarios of diffusion combustion of the hydrogen round microjets, including «supersonic burning» in the presence of supersonic cells as by air, and on hydrogen are for the first time submitted. It is found that stabilization of

the hydrogen round microjet subsonic burning is connected with existence of «bottleneck flame region», and «supersonic burning» of a microjet with existence of supersonic cells. Hysteresis of the hydrogen round microjets diffusion combustion is connected with the microjet ignition method of (near or far from a nozzle exit) and directions of the velocity change of its efflux (growth or reduction) is found. It is shown that «supersonic diffusion combustion» of the hydrogen round microjets as by air, and to hydrogen, is implemented only in a situation of the micronozzle diameter size outlet lying in the range of 1 mm.

*Keywords:* hydrogen round microjet, diffusion combustion, «bottleneck flame region», mean velocity profile, «supersonic combustion», hysteresis, schlieren method, shadow patterns.

*For citation:*

Kozlov V. V., Grek G. R., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G., Vikhorev V. V. Diffusion Combustion of Hydrogen Round Microjet at Sub- and Supersonic Velocity Efflux from Nozzle. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 37–52. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-37-52

**Д. Ю. Труфанов<sup>1</sup>, А. П. Завьялов<sup>1</sup>, К. В. Зобов<sup>1</sup>  
В. В. Сызранцев<sup>1</sup>, С. П. Бардаханов<sup>1-3</sup>**

<sup>1</sup> *Институт теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН  
ул. Институтская, 4/1, Новосибирск, 630090, Россия*

<sup>2</sup> *Бурятский государственный университет  
ул. Смолина, 24а, Улан-Удэ, 670000, Россия*

<sup>3</sup> *Новосибирский государственный технический университет  
пр. К. Маркса, 20, Новосибирск, 630073, Россия*

*trufanov@itam.nsc.ru*

## **АНАЛИЗ ИЗМЕНЕНИЯ ЭЛЕМЕНТНОГО ПРИМЕСНОГО СОСТАВА ПРИ ПОЛУЧЕНИИ НАНОПОРОШКА ДИОКСИДА КРЕМНИЯ МЕТОДОМ ИСПАРЕНИЯ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ\***

Работа посвящена анализу изменения элементного примесного состава при производстве нанопорошка методом испарения электронным пучком. Решена задача оценки условий в зоне испарения исходного вещества. Приведено теоретическое обоснование методики оценки условий испарения высокочистого кварцевого песка при получении нанопорошка диоксида кремния методом испарения электронным пучком. Оценка температуры испарения по изменению концентраций алюминия и титана составила 2493 К. Проведены экспериментальные измерения и сравнение элементного примесного состава испаряемого вещества и полученного нанопорошка для двух образцов диоксида кремния.

*Ключевые слова:* получение нанопорошков, испарение, диоксид кремния, примеси, электронный пучок.

### **Введение**

Возрастающий интерес к наноразмерным порошкам поднимает все больше вопросов об их классификации и свойствах, на которые может оказать влияние метод их производства. Продолжающееся развитие методов производства и областей применения наноразмерных порошков показало кардинальное влияние методики производства на свойства нанопорошка. Создание и развитие методов производства часто приводит к получению нанопорошков сходных по размерам и составу, но различных по свойствам.

Это может приводить как к расширению области их применения, так и к невозможности применения в уже известных процессах. В связи с этим возникает вопрос о контроле параметров производственного процесса и отслеживании причин, вызывающих изменение производимых наночастиц.

Однако существует две группы сложностей, возникающих при контроле. Первая связана с измерением параметров самого нанопорошка. Малость размеров и сложность методик проведения каких-либо измерений в таких масштабах делает их почти нереализуемыми в процессе производства.

---

\* Работа поддержана грантом РФФИ № 16-31-60076.

Вторая группа связана с критическими условиями производства. Часто используются высокие давления, температуры, токи, плазменные эффекты. Например, в универсальном методе производства нанопорошков испарением электронным пучком присутствует ряд таких условий [1; 2]. Высокая температура (кипение исходного сырья) исключает возможность использования контактных методов измерения температуры или давления в зоне испарения. Тормозное излучение пучка электронов, используемого в качестве источника нагрева, сильно осложняет и бесконтактные методы измерения. Дополнительные проблемы для использования, например, пирометров или тепловизоров, создает наличие разгоряченного пара газа носителя на пути между приемником детектора и непосредственной зоной испарения. Все эти факторы значительно затрудняют контроль протекания процессов во время образования наночастиц.

Две эти группы сложностей приводят к необходимости строить модели процесса получения нанопорошка, опирающиеся на параметры исходного сырья и конечного продукта, без точных данных о параметрах самого процесса.

Целью представленной работы было создание и апробация косвенного метода оценки условий, испарения исходного вещества при получении нанопорошка методом испарения электронным пучком высокой энергии. В работе приведено теоретическое расчетное описание процесса и его сравнение с измерением элементного примесного состава испаряемого вещества и полученного нанопорошка диоксида кремния.

## Метод и материалы

### *Метод производства наночастиц*

В работах [1; 2] описан относительно новый продуктивный способ получения нанопорошков диоксида кремния, в котором используется установка со сфокусированным пучком электронов, выпущенным в атмосферу воздуха при энергии 1,4 МэВ. При воздействии ускоренными электронами на твердое тело, в данном случае кварцевый песок, энергия выделяется непосредственно в объеме вещества на глубине нескольких миллиметров [3], вызывая ионизацию вещества и разогрев этого слоя. При достаточной

мощности температура поверхностного слоя расплавленного жидкого вещества достигает температуры кипения, т. е. начинается интенсивное испарение вещества. Энергия ускоренных электронов расходуется в основном на нагрев и испарение кварцевого песка, излучение с поверхности расплавленной жидкости и нагрев воздуха в реакторе. Потери энергии с отраженными электронами составляют 5–15 % [4].

Примесный состав материала мишени (области, подвергающейся испарению) может влиять на динамику его испарения, а следовательно, на размеры частиц и их состав. Ранее подобного рода влияния детально не рассматривались, хотя неоднократно отмечалось [1; 2], что происходит очистка материала исходного вещества. Однако подробный анализ примесного состава исходного материала и получаемого нанопорошка выявляет их заметные отличия.

### *Метод измерения примесного состава*

Анализ состава примесей проводился совместно со специалистами Института неорганической химии СО РАН методом атомно-эмиссионной спектроскопии индуктивно-связанной плазмы (ИСП-АЭС). Эта методика предназначена для определения примесей в кремнии и диоксиде кремния высокой чистоты в интервале концентраций  $10^{-1}$ – $10^{-8}$  масс. %. Она основана на предварительном удалении основного элемента – кремния – в виде тетрафторида и растворении остатка в разбавленной азотной кислоте. Далее раствор анализируемого вещества вводится в горелку ИСП в форме водного аэрозоля. Излучаемый атомами или ионами в ИСП свет преобразуется фотоумножителем спектрометра в электрический сигнал. Интенсивность полученного сигнала сравнивается с предварительно измеренной интенсивностью для раствора элемента известной концентрации; по этим измерениям рассчитывается искомая концентрация.

### *Модель изменения примесного состава вещества*

Основное вещество с примесями можно рассматривать в качестве раствора, в котором основное вещество выступает в роли растворителя. Малая концентрация раство-

ренного вещества позволяет описывать свойства основного вещества – растворителя – так, как если бы раствор был идеальным. Поскольку в данной работе использовались достаточно чистые материалы (> 99 %), то раствор можно считать предельно разбавленным и обладающим свойствами идеального раствора. Отсутствие химического взаимодействия между растворителем и примесями позволяет также рассматривать последние как компоненты идеального раствора.

В этом случае справедлив закон Рауля [5]: «Равновесное в идеальном растворе парциальное давление пара  $i$ -го компонента  $P_i$  пропорционально мольной доле этого компонента  $X_i$ ». Коэффициент пропорциональности для идеального раствора равен парциальному давлению насыщенного пара над чистым компонентом при той же температуре  $P_{i^0}$ :

$$P_i(T) = P_{i^0}(T) X_i. \quad (1)$$

Величины, относящиеся к основному веществу (растворителю), будем обозначать индексом «s» (solvent). Выражение (1) тогда преобразуется так:

$$\frac{P_{s^0}(T) - P_i(T)}{P_{s^0}(T)} = 1 - X_s = \sum X_i. \quad (2)$$

Выражение (2) есть иная формулировка закона Рауля (1). Оно свидетельствует о том, что для идеальных растворов давление пара растворителя  $P_s$  над поверхностью раствора меньше давления пара  $P_{s^0}$  над чистым веществом растворителя и определяется только суммарной мольной долей всех растворенных веществ. Кинетически этот результат объясняется тем, что в приповерхностном испаряющемся слое часть объема занята молекулами растворенного вещества, что не дает пересекать границу испарения молекулами растворителя столь же интенсивно, как они могли бы это делать при испарении чистого вещества. Однако для высокочистых веществ суммарная мольная доля примесей невелика, и отклонение от давления над чистым веществом растворителя обнаружить практически невозможно.

Полное парциальное давление паров над раствором есть сумма давлений отдельных компонент:

$$P(T) = \sum P_{i^0}(T) X_i. \quad (3)$$

Поскольку зависимость давления от температуры различна для различных веществ, то суммарное давление  $P$  отличается от давления паров над чистым растворителем  $P_{s^0}$ . Если растворенные вещества более летучи, чем растворитель, то давление паров  $P(T)$  при той же температуре будет превышать значение  $P_{s^0}(T)$ . Если менее летучи, то давление паров  $P(T)$  будет меньше  $P_{s^0}(T)$ . В частности, для двухкомпонентного идеального раствора при полностью нелетучем растворенном веществе температура кипения идеального раствора выше, чем растворителя, и разница пропорциональна мольной концентрации растворенного вещества.

Используя уравнение состояния идеального газа в виде  $P = c * k * T$  для (1) и (3), получим для концентраций паров  $c$ :

$$c_i(T) = c_{i^0}(T) X_i. \quad (4a)$$

$$c(T) = c_{s^0}(T) (1 - \sum X_i) + \sum c_{i^0}(T) X_i. \quad (4b)$$

Выражение (4b) показывает, что наличие примесей с меньшей летучестью уменьшает суммарную концентрацию паров, что может выражаться в уменьшении производительности процесса испарения. Для высокочистых веществ суммарная мольная доля примесей невелика и общая концентрация паров над чистым растворителем  $c(T) \approx c_{s^0}(T)$ .

Выражение (4a) показывает, как концентрация отдельных компонент изменяется при испарении вещества. Из (4a) можно получить выражение для мольной концентрации примесей в парах  $X_i'$ :

$$\frac{c_i(T)}{c_s(T)} = X_i = \frac{c_{i^0}(T)}{c_{s^0}(T)} \frac{X_i}{1 - \sum X_i}. \quad (5)$$

Для высокочистых веществ соотношение (5) малопригодно ввиду большой ошибки в

определении отношения  $X_i/(1 - \sum X_i)$ . Это связано с тем, что примесный состав отдельных компонент  $X_i$  может быть измерен достаточно точно. Однако конечная чистота основного вещества (растворителя)  $1 - \sum X_i$  известна намного хуже. По этой причине эффективнее опираться на относительные изменения концентраций компонент примесей:

$$\frac{c_i(T)}{c_s(T)} = \frac{X_i}{X_j} = \frac{c_{i^0}(T)}{c_{j^0}(T)} \frac{X_i}{X_j}. \quad (6)$$

Выражения (4)–(6), основанные на законе Рауля (1), отражают причины и закономерности изменения примесного состава вещества при его испарении и дальнейшей конденсации в виде наночастиц. Перепишем (6), выражающее соотношение между мольными долями в конденсированном веществе и его парах, в несколько ином виде:

$$\frac{c_{i^0}(T)}{c_{j^0}(T)} = \frac{X_i/X_i}{X_j/X_j}. \quad (7)$$

При известных зависимостях концентрации паров чистых веществ от температуры  $c_{i^0}(T)$  в левой части выражения (7) оказывается известная функция температуры. Поэтому, если известны соотношения мольной концентрации примесей соответствующих веществ в конденсированном состоянии  $X_i$  и парах  $X_i'$ , выражение (7) позволяет узнать температуру  $T$ , при которой происходит испарение.

Из эксперимента нам известен примесный элементный состав испаряемого материала и полученного из паров нанопорошка. Чтобы применить выражение (7) для оценки температуры испарения материала мишени, необходимо сделать некоторые дополнительные предположения и уточнения.

Во-первых, элементный состав примесей в нанопорошке будем считать точно соответствующим элементному составу примесей в парах вещества мишени, при конденсации которых и формируется нанопорошок. Вопрос о том, насколько примесный состав паров соответствует примесному составу

получаемых в процессе наночастиц, будет обсуждаться далее.

Во-вторых, по измерениям примесного состава нам известны молярные концентрации элементов примесных веществ. В то время как при получении выражения (7) рассматривалось испарение веществ. Связь между мольными концентрациями вещества  $X_i$  и соответствующего ему элемента  $\chi_i$  задается через стехиометрический индекс  $I_i$ , с которым данный элемент входит в состав вещества:

$$X_i = \chi_i / I_i. \quad (8)$$

Например, титан Ti и алюминий Al предполагаются входящими в состав исходного вещества в своих оксидных формах  $TiO_2$  и  $Al_2O_3$ , поэтому для этих элементов получаем

$$\begin{aligned} X_{TiO_2} &= \chi_{Ti} I_{TiO_2} = \chi_{Ti}, \\ X_{Al_2O_3} &= \chi_{Al} I_{Al_2O_3} = \chi_{Al}^2. \end{aligned} \quad (9)$$

В-третьих, выражение (7) получено для примесных веществ, испаряющихся без изменения состава. Мы предполагаем, что вещества испаряются с разложением. В этом случае пары над чистым веществом лишь в сумме по составу соответствуют стехиометрии испаряемого вещества. И хотя общая оценка концентрации частиц в паре на основе закона для идеальных газов остается верной, для оценки концентрации конкретного элемента в парах необходимо знать отдельно концентрацию паров всех компонент. При этом концентрация в парах  $i$ -го элемента будет суммой концентраций паров отдельных компонент, умноженных на соответствующие стехиометрические индексы, с которыми данный элемент входит в состав присутствующих в парах веществ:

$$c_{i^0}(T) = \sum_k I_k c_{ik^0}(T). \quad (10)$$

Можно рассмотреть испарение с разложением в два этапа: сначала разложение в конденсированном состоянии с той же эффективностью, что и при испарении, а затем испарение уже продуктов разложения. Тогда в качестве концентрации паров примеси в выражении (5) можно использовать кон-

центрацию элемента (10). В этом случае выражение (5) даст значение мольной концентрации элемента в парах:

$$\frac{c_i(T)}{c_s(T)} = \frac{c_{i^0}(T)}{c_{s^0}(T)} \frac{X_i}{1 - \sum X_i} = \frac{\sum_k I_k c_{ik^0}(T)}{c_{s^0}(T)} \frac{\chi_i/I_i}{1 - \sum X_i} = \chi_i. \quad (11)$$

Тогда аналогичное (7) выражение будет выглядеть так:

$$\frac{c_{i^0}(T)}{c_{j^0}(T)} = \frac{I_i \chi_i/\chi_i}{I_j \chi_j/\chi_j}. \quad (12)$$

Выражение (12) в дальнейшем и будет использовано для оценки условий испарения материала по различиям в концентрации примесных элементов в нанопорошке и исходном материале.

## Результаты

### Состав примесей в исходном сырье

Для анализа были взяты нанопорошки диоксида кремния произведенные из высокочистого кварца. В качестве исходных использовались следующие материалы.

*Материал № 1.* Кварцевый песок одного из месторождений Читинской области (чистота ~ 99,99 %);

*Материал № 2.* Кварцевый песок месторождения в Республике Якутия (тонкий помол, но загрязнен материалами мелющего оборудования – чистота ~ 99 %).

На рис. 1 приведены данные по обнаруженным в исходных материалах элементам примесей. Как видно, материал № 1 обладает наименьшей концентрацией примесей по большинству элементов. Основными примесными элементами являются Al, Ca, Fe, K, Na. Материал № 2 обладает меньшей степенью чистоты. Он имеет значительно большее содержание Cr, Cu, Fe, Li, Mg, Mn, Ni, Ti, Zn и Zr. Все эти элементы входят в состав различных высокопрочных сплавов, что может указывать на загрязнение материала № 2 материалами мелющего оборудования.

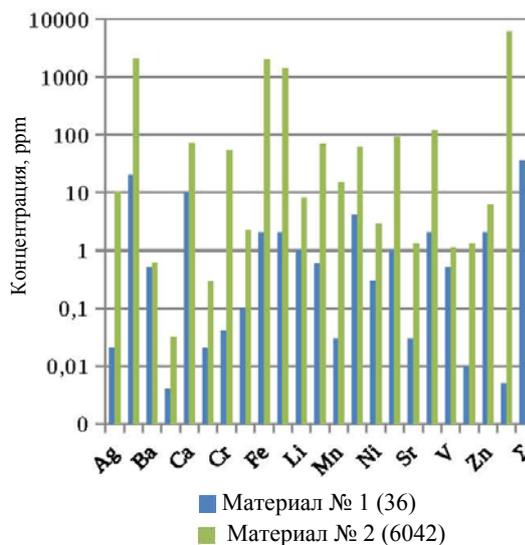


Рис. 1. Элементный состав примесей в исходных материалах. Σ – суммарная концентрация обнаруженных примесей (значение приведено в легенде), ppm

Оценка чистоты вещества и температуры испарения будут проводиться для Al и Ti. Значения для остальных элементов может быть искажено за счет различных факторов. В частности, Na, P, K содержатся в большинстве органических веществ и неизбежно вносятся при контакте с человеком. Fe входит в состав элементов тракта, в том числе сублиматора, где происходит испарение материалов.

### Образцы нанопорошков, полученные из сырья № 1

Материал № 1 использовался при получении нанопорошков при воздействии на материал в течение 30 мин электронным пучком мощностью 12,6 кВт с расстояния 17,5 мм (расход воздуха 70 л/мин). Для изучения состава примесей были отобраны два образца:

- образец № 1.1 собран с фильтра;
- образец № 1.2 собран со стенок герметичного пластикового бокса, где располагался фильтр.

На рис. 2 приведены данные по обнаруженным в наночастицах элементам примесей в сравнении с примесным составом материала, из которого были получены нанопорошки.

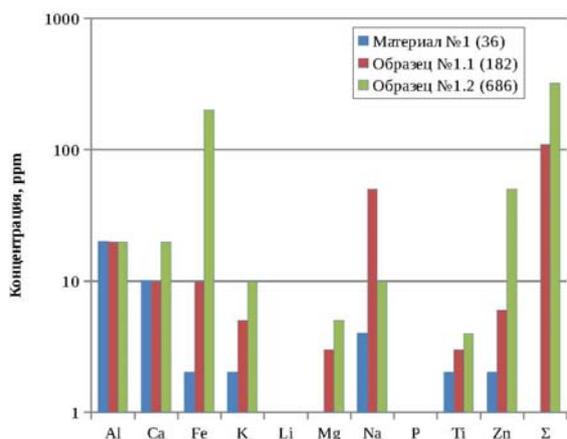


Рис. 2. Элементный примесный состав материала № 1 и полученных из него образцов нанопорошка.  $\Sigma$  – суммарная концентрация обнаруженных примесей (значение приведено в легенде), ppm

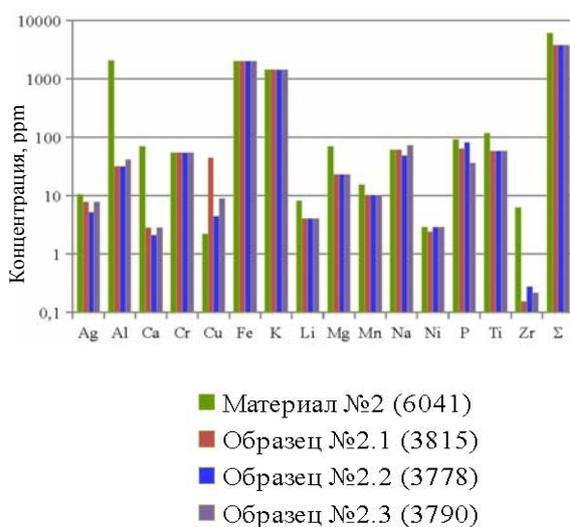


Рис. 3. Элементный примесный состав материала № 2 и полученных из него образцов нанопорошка.  $\Sigma$  – суммарная концентрация обнаруженных примесей (значение приведено в легенде), ppm

В целом образцы нанопорошков № 1.1 и 1.2 содержат большую концентрацию примесей, чем исходный высокочистый материал № 1. Одной из причин увеличения концентрации примесей может быть загрязнение веществами, при работе с которыми ранее на данной установке использовались отдельные блоки экспериментального тракта,

в частности при получении других нанопорошков.

С загрязнениями следует связывать увеличение концентрации таких элементов, как W, Ca, Mg, которые в своих оксидных формах являются малолетучими по сравнению с  $\text{SiO}_2$  веществами.

Так как в этих экспериментах использовался высокочистый материал, то результаты, приведенные на рис. 2, можно использовать в дальнейшем для оценки количества примесей, вносимых в образцы в качестве загрязнений, не связанных с эволюцией примесного состава в процессе получения нанопорошка через испарение и конденсацию материала мишени.

#### Образцы нанопорошков, полученные из сырья № 2

Материал № 2 использовался в серии экспериментов по исследованию влияния мощности электронного пучка на химическую чистоту получаемого материала, в которых прочие условия получения оставались постоянными (расстояние 17 мм, расход воздуха 54,6 л/мин). Всего было получено три образца:

- образец № 2.1 собран из герметичного бокса после 40 мин воздействия электронным пучком мощностью 12,6 кВт;
- образец № 2.2 собран из герметичного бокса после двукратного воздействия на мишень в течение 30 мин (суммарно 60 мин) электронным пучком мощностью 14 кВт;
- образец № 2.3 собран из герметичного бокса после двукратного воздействия на мишень в течение 20 мин (суммарно 40 мин) электронным пучком мощностью 15,4 кВт.

На рис. 3 приведены данные по обнаруженным в образцах примесям в сравнении с примесным составом исходного материала.

Образцы нанопорошков № 2.1, 2.2 и 2.3 по большинству элементов содержат сопоставимое или меньшее число примесей, чем исходный материал № 2. Ситуация обратная только для Cu и Zn. Однако по экспериментам при испарении мишеней из материала № 1 видно, что увеличение концентрации этих элементов может быть связано с загрязнением образцов, поскольку они входят в состав материалов экспериментального тракта.

### Оценка условий испарения материала мишени

Получение нанопорошков диоксида кремния  $\text{SiO}_2$  происходило в воздушной атмосфере путем испарения высокочистого кварцевого материала. Несмотря на то, что испарение  $\text{SiO}_2$  идет с разложением, можно считать, что в насыщенной кислородом атмосфере происходит доокисление до высшей степени оксида. Это же касается и наиболее важных примесей – элементов Ti и Al, которые, как предполагается, находятся в исходном материале в оксидных формах –  $\text{TiO}_2$  и  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Поскольку все вещества –  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$  и  $\text{Al}_2\text{O}_3$  – являются твердыми веществами при нормальных условиях, то можно считать, что примесный состав нанопорошков по элементам Ti и Al в точности соответствует соотношению концентраций этих элементов в парах, из которых формируются наночастицы.

На рис. 4 приведена расчетная зависимость отношения концентрации паров над расплавом оксида алюминия  $\text{Al}_2\text{O}_3$  в пересчете на элементарный алюминий Al по всем компонентам пара к концентрации паров над расплавом диоксида титана  $\text{TiO}_2$  в пересчете на элементарный титан Ti по всем компонентам пара  $c_{\text{Al}^0}/c_{\text{Ti}^0}$  в виде зависимости от температуры  $T$ , построенная по описанному в [6] методу с использованием данных о термодинамических функциях веществ из [7], что соответствует левой части выражения (12). Точкой отмечено значение, рассчитанное в соответствии с (12) по экспериментальным данным о примесном составе материала № 2 и нанопорошка, полученного вследствие испарения. Также отмечены значения, рассчитанные в соответствии с правой частью выражения (12) по данным из рис. 2, 3 о величине элементного примесного состава алюминия Al и титана Ti в материале № 2 и соответствующего нанопорошка, примесный состав которого считается соответствующим примесному составу паров.

Таким образом, данные о примесном составе алюминия Al и титана Ti в исходном материале и полученных нанопорошках совместно с рассчитанными зависимостями концентраций различных компонент паров над чистыми веществами позволяют получить оценки температуры испарения мате-

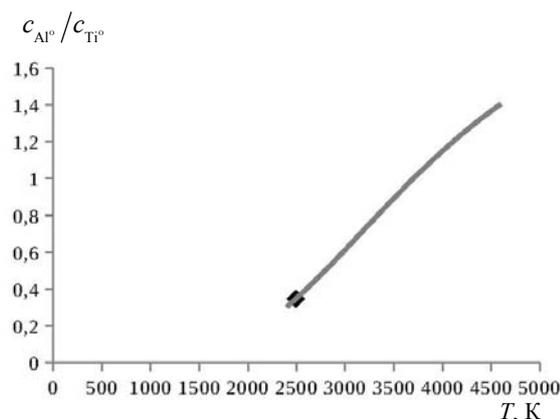


Рис. 4. Соотношение концентраций элементарных алюминия Al и титана Ti в парах чистых  $\text{Al}_2\text{O}_3$  и  $\text{TiO}_2$ , построенное по расчетным данным  $c_{\text{Al}^0}/c_{\text{Ti}^0}$  в зависимости от температуры  $T$

риала мишени в соответствии с выражением (12). Результат оценки этой температуры составляет 2493 K, а давление паров основного вещества ( $\text{SiO}_2$ ) – 0,226 атм.

### Выводы

Исследования элементного состава свидетельствуют о его изменении в процессе трансформации испаряемого вещества из конденсированной макроскопической фазы в наноразмерные частицы.

На основе отличий в составе примесей исходного материала и получаемого нанопорошка разработана методика оценки условий испарения.

Оценка температуры испарения по изменению концентраций алюминия и титана составила 2493 K.

Если содержание некоторых примесных элементов (Al, Ca, Mg, Zr) в исходном сырье велико, то их содержание в нанопорошке уменьшается. Это может быть связано со слабой испаряемостью в условиях синтеза веществ, содержащих эти элементы.

### Список литературы

1. Бардаханов С. П., Корчагин А. И., Куксанов Н. К., Лаврухин А. В., Салимов Р. А., Фадеев С. Н., Черепков В. В. Получение нанопорошков испарением исходных веществ на ускорителе электронов при атмосферном давлении // Докл. АН. 2006. Т. 409, № 3. С. 320–323.

2. Bardakhanov S. P., Korchagin A. I., Kusanov N. K., Lavrukhin A. V., Salimov R. A., Fadeev S. N., Cherepkov V. V. Nanopowder production based on technology of solid raw substances evaporation by electron beam accelerator // *Materials Science and Engineering*: B. 2006. Vol. 132, № 1-2. P. 204–208.

3. Баранов В. Ф. Дозиметрия электронного излучения. М.: Атомиздат, 1974.

4. Ito R., Andreo P., Tabata T. Reflection of electrons and protons from solid bombarded by 0.1 to 100 MeV electrons // *J. Radiat. Phys. Chem.* 1993. Vol. 42. No. 4–6. P. 761–764.

5. Стромберг А. Г., Семченко Д. П. Физическая химия. М.: Высш. шк., 1999. 527 с.

6. Голковский М. Г., Труфанов Д. Ю., Завьялов А. П., Лысенко В. И., Бардаханов С. П. Оценка парциального давления паров для различных оксидов // *Теплофизика и аэромеханика*. 2012. Т. 19, № 3. С. 369–374.

7. Глушко В. П., Гурвич Л. В., Бергман Г. А., Вейц И. В., Медведев В. А., Хачкурузов Г. А., Юнгман В. С. Термодинамические свойства индивидуальных веществ: Справ. изд.: В 4 т. 3-е изд. М.: Наука, 1978–1982.

*Материал поступил в редколлегию 04.03.2018*

**D. Yu. Ttufanov<sup>1</sup>, A. P. Zavjalov<sup>1</sup>, K. V. Zobov<sup>1</sup>  
V. V. Syzrantsev<sup>1,2</sup>, S. P. Bardakhanov<sup>1-3</sup>**

<sup>1</sup> *Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS  
4/1 Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

<sup>2</sup> *Buryat State University  
24a Smolin Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

<sup>3</sup> *Novosibirsk State Technical University  
20 K. Marx Ave., Novosibirsk, 630073, Russian Federation*

*ttufanov@itam.nsc.ru*

## **ANALYSIS OF CHANGES IN THE ELEMENTAL IMPURITY COMPOSITION IN THE SILICA NANOPOWDER SYNTHESIS BY ELECTRON BEAM EVAPORATION**

The paper analyzes the changes in elemental impurity composition in the nanopowder synthesis by electron beam evaporation. The conditions in the zone of the initial material evaporation were evaluated. The theoretical justification of the method described of the conditions evaluation at evaporation of high-purity quartz sand in the process of silica nanopowder synthesis by electron beam evaporation.

Estimated evaporation temperature due to change of the aluminum and titanium concentrations was 2493 K.

The experimental measurement and comparison of the elemental impurity compositions of the vaporized material and the resulting nanopowder for two silica samples had been conducted.

*Keywords:* special surface, particle size, synthesis of nanoparticles, electron beam.

*For citation:*

*Ttufanov D. Yu., Zavjalov A. P., Zobov K. V., Syzrantsev V. V., Bardakhanov S. P. Analysis of Changes in the Elemental Impurity Composition in the Silica Nanopowder Synthesis by Electron Beam Evaporation. Siberian Journal of Physics, 2018, vol. 13, no. 2, p. 53–60. (In Russ.)*

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-53-60

**И. Б. Клементьева, И. О. Тепляков, Д. А. Виноградов, Ю. П. Ивочкин**

*Объединенный институт высоких температур РАН  
ул. Ижорская, д. 13, стр. 2, Москва, 125412, Россия*

*ira.klementyeva@mail.ru*

**РЕЖИМЫ ЭЛЕКТРОВИХРЕВОГО ТЕЧЕНИЯ  
В ПОЛУСФЕРИЧЕСКОЙ ГЕОМЕТРИИ  
(КРАТКОЕ СООБЩЕНИЕ)\***

**Введение**

Взаимодействие электрического тока, протекающего в среде, с собственным и внешним магнитными полями является причиной возникновения электровихревых течений (ЭВТ), имеющих место как в естественных (атмосферное торнадо, галактики, гидромагнитное динамо), так и в технических системах (использование жидкометаллического теплоносителя, электродуговые и электрошлаковые печи, сварка). Изучение ЭВТ, с одной стороны, поможет понять суть природных феноменов, а с другой – позволит создать инструменты управления эффективностью технологических процессов.

В данной работе исследуются различные режимы электровихревого течения расплава эвтектики, формирующегося под действием электромагнитной силы в ограниченном объеме полусферической геометрии. При этом основное внимание уделяется условиям выбора физической модели описания: магнитогидродинамической или электродинамической.

**Постановка задачи**

Рассматриваемая система соответствует ранее созданной и описанной, например, в [1] экспериментальной секции. Численные исследования процессов проводятся с использованием коммерческого CFD пакета и собственных подпрограмм расчета электродинамики. Вычисления базируются как на электродинамическом приближении (когда в законе Ома полного тока не учитывается индуцируемый ток, возникающий при движении среды в магнитном поле, что справедливо для малых магнитных чисел Рейнольдса), так и на магнитогидродинамической модели.

**Результаты**

После включения электрического тока вследствие его взаимодействия с собственным магнитным полем под действием электромагнитной силы в объеме формируется интенсивное электровихревое течение жидкого металла, представляющее собой торои-

---

\* Работа была представлена в качестве приглашенного доклада на XII Всероссийской конференции молодых ученых «Проблемы механики: теория, эксперимент и новые технологии», 16–22 марта 2018 г., Новосибирск – Шерегеш.

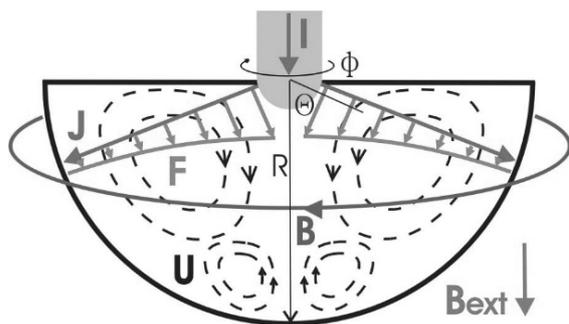


Рис. 1. Схема зарождения электровихревого течения и вторичного вихря

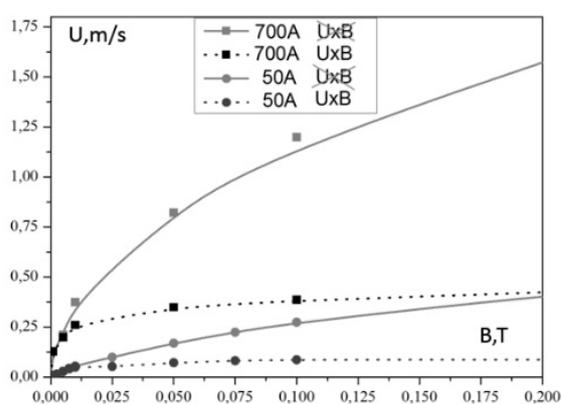


Рис. 2. Зависимость скорости на оси от индукции внешнего магнитного поля

дальний вихрь, и скорость на оси рабочего участка растет, достигая значений нескольких сантиметров в секунду для рассматриваемых случаев. В то же время в результате взаимодействия тока с внешним магнитным полем в системе развивается азимутальная закрутка расплава, которая, в свою очередь, приводит к формированию в придонной области вторичного вихря, направленного встречно электровихревому, и скорость на оси рабочего участка падает. В результате в объеме имеет место сложное течение (рис. 1), состоящее из двух осесимметричных вихревых структур, вращающихся в противоположных направлениях в присутствии азимутальной закрутки – это вторичный вихрь низкой интенсивности, занимающий придонную область и электровихревое течение, сконцентрированное преимущественно у поверхности. Чем выше значение индук-

ции магнитного поля, тем раньше формируется вторичный вихрь (рис. 2). Это также зависит от величины пропускаемого электрического тока: чем ниже его значение, тем быстрее образуется вторичный вихрь при прочих равных условиях. Время образования вторичного вихря определяется по моменту его возникновения вне зависимости от местоположения. Однако координата зарождения по глубине контейнера зависит от величин внешнего магнитного поля и пропускаемого тока, которые задают толщину азимутально вращающегося слоя расплава. С уменьшением поля и увеличением тока координата зарождения вторичного вихря смещается ко дну объема.

Предварительные расчеты показывают, что учет индуцированного тока существенно влияет на величину скорости в определенных условиях.

## Список литературы

1. Vinogradov D. A., Teplyakov I. O., Ivochkin Yu. P., Klementyeva I. B. Influence of the external magnetic field on hydrodynamic structure of the electrovortex flow in hemispherical container // Journal of Physics: Conference Series (JPCS). 2017. Vol. 899, № 082006.

**I. B. Klementyeva, I. O. Teplyakov, D. A. Vinogradov, Yu. P. Ivochkin**

*Joint Institute for High Temperatures RAS  
13 Bd. 2 Izhorskaya Str. Moscow, 125412, Russian Federation*

*ira.klementyeva@mail.ru*

**MODES OF ELECTROVORTEX FLOWS FORMING  
IN HEMISPHERICAL GEOMETRY**

Results of the study of the vortex flows forming under the action of electromotive body force in the hemispherical volume filled with liquid metal are presented in the paper. Experimental setup for the investigations of the processes is described here. Numerical simulation based on magnetohydrodynamical and electrodynamic models are discussed. Several modes of the electrovortex flows observed in the system are considered. Velocity dependences on the values of electric current and external magnetic field are also constructed.

*Keywords:* liquid metal, magnetic field, electric current, electromotive body force, vortex flow, electrovortex flow, magnetohydrodynamics, hydrodynamic structures.

*For citation:*

Klementyeva I. B., Teplyakov I. O., Vinogradov D. A., Ivochkin Yu. P. Modes of Electrovortex Flows Forming in Hemispherical Geometry. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 61–63. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-61-63

УДК 535:621.373.826:539

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-64-69

Г. М. Борисов<sup>1,2</sup>, В. Г. Гольдорт<sup>1</sup>, К. С. Журавлёв<sup>1,2</sup>, А. А. Ковалёв<sup>1</sup>  
С. А. Кочубей<sup>1</sup>, Д. В. Ледовских<sup>1</sup>, Т. В. Малин<sup>1</sup>, Н. Н. Рубцова<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН  
пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия

<sup>2</sup>Новосибирский государственный университет  
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия

rubtsova@isp.nsc.ru

## ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В ТОНКОЙ ПЛЕНКЕ $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$ \*

Вторая гармоника излучения фемтосекундного лазера  $Yb^{3+}:KY(WO_4)_2$  в пропускании тонкой пленки  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$ , выращенной на монокристалле сапфира ориентации (0001), не обнаруживает насыщения для интенсивностей инфракрасной накачки до 200 МВт/см<sup>2</sup>. Излучение второй гармоники  $p$ -поляризации зарегистрировано как для накачки  $p$ -поляризации, так и для накачки  $s$ -поляризации; во втором случае сигнал второй гармоники существенно ниже. Для обоих случаев поляризации накачки сигнал второй гармоники отсутствует при нормальном падении излучения и достигает максимального значения для угла падения около 50° с последующим уменьшением. Обнаружены признаки латеральной неоднородности образца на уровне 5 %, обсуждается отсутствие азимутальной зависимости, соответствующей оси симметрии шестого порядка.

*Ключевые слова:* генерация второй гармоники, наноразмерные полупроводниковые материалы  $A_3B_5$ .

### Введение

Полупроводниковые соединения группы  $A_3B_5$  служат объектом фундаментальных и прикладных исследований на протяжении многих лет. Наш опыт в разработке насыщающихся поглотителей, изготовленных на основе наноразмерных структур, включающих квантовые ямы  $In_xGa_{1-x}As$  и предназначенных для синхронизации мод лазеров, свидетельствует о богатых возможностях этой группы в конструировании материалов с заданными оптическими характеристиками [1–3].

Относительно новые материалы той же группы, представленные нитридами галлия

и алюминия [4; 5], оказались перспективными в разработке многих элементов фотоники. Значение этих материалов для практического применения подтверждает присуждение Нобелевской премии [6] за исследования в этой области. Физические параметры нитрида галлия и алюминия могут меняться в очень широких пределах; например, в работе [7] было показано, что нелинейная восприимчивость второго порядка в толстых пленках  $Al_xGa_{1-x}N$  может изменяться в больших пределах – от максимального значения до нуля – при изменении концентрации алюминия. В данной работе исследованы сигналы второй гармоники излучения фемтосекундного лазера ИК диапазона в

\* Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 16-02-00018.

Борисов Г. М., Гольдорт В. Г., Журавлёв К. С., Ковалёв А. А., Кочубей С. А., Ледовских Д. В., Малин Т. В., Рубцова Н. Н. Генерация второй гармоники в тонкой пленке  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 2. С. 64–69.

пропускании тонкой (субмикронной) пленки  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$ .

### Образец и техника измерений

Образец представлял собой слой AlN толщиной 170 нм и поверх него слой  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  толщиной 980 нм. Эти слои выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на монокристаллической подложке сапфира  $Al_2O_3$  ориентации (0001). Образец прозрачен как для основного излучения с длиной волны 1040 нм, использованного в эксперименте, так и для второй гармоники, поэтому излучение второй гармоники регистрировалось в пропускании образца.

Схема эксперимента приведена на рис. 1. В качестве источника излучения использован инфракрасный фемтосекундный лазер  $Yb^{3+}:KY(WO_4)_2$  (Техноскан, Новосибирск). Лазер работал в режиме синхронизации мод с центральной длиной волны излучения 1040 нм, с частотой следования импульсов 80 МГц и с длительностью импульсов 400 фс. Средняя мощность лазерного излучения не превышала 0,3 Вт. При необходимости пучок излучения предварительно расширялся коллиматором. Излучение лазера фокусировалось короткофокусной линзой 3 (использовались линзы с фокусным расстоянием 15 или 6 мм) на образец. Линза 5 корректировала расходимость пучка за образцом, призма разделяла в пространстве инфракрасное и видимое излучения. Излучение накачки после призмы поглощалось экраном, а излучение второй гармоники, пройдя через механический прерыватель (частота прерывания около 200 Гц), регистрировалось фотоэлектронным умножителем. Сигнал ФЭУ поступал на вход синхронного детектора, опорный сигнал формировался оптронной парой на частоте прерывания сигнала второй гармоники. В эксперименте использован ФЭУ-79 с чувствительностью  $0,2 \cdot 10^{12}$  В/Вт в зеленой области спектра при нагрузке 50 Ом.

При необходимости можно было увеличить сигнал второй гармоники за счет увеличения интенсивности накачки (применением линзы 3 с более коротким фокусом и предварительным расширением пучка коллиматором) и за счет увеличения усиления путем подбора нагрузочного сопротивления ФЭУ. Оценка длины синхронизма для указанных спектральных областей излучения

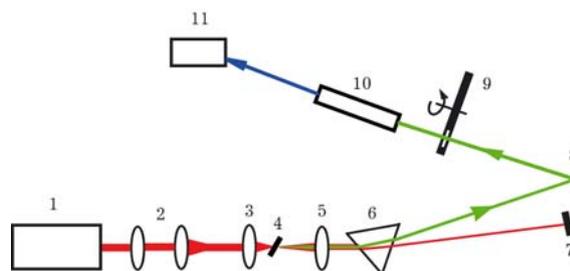


Рис. 1. Схема измерений: 1 – фемтосекундный ИК лазер; 2 – коллиматор; 3 – фокусирующая линза; 4 – образец; 5 – корректирующая линза; 6 – кварцевая призма; 7 – поглотитель ИК излучения; 8 – плоское зеркало; 9 – механический прерыватель; 10 – ФЭУ; 11 – синхронный детектор

накачки и второй гармоники излучения для материала GaN по известным из литературы значениям коэффициента преломления на частоте накачки и на частоте излучения второй гармоники составила 2,4 микрон, что меньше толщины данного образца  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  с малой долей Al. Проблема засветки ФЭУ мощным излучением накачки решалась использованием диафрагм для пучка излучения второй гармоники; положение диафрагм определялось по излучению второй гармоники в нелинейном кристалле с высокой эффективностью генерации второй гармоники, помещаемого вместо исследуемого образца.

### Результаты

При нормальном падении возбуждающего фемтосекундного излучения на образец сигнал второй гармоники отсутствовал. Световые сигналы второй гармоники существенно зависели от поляризации накачки и угла падения излучения. Угловая зависимость и поляризационные диаграммы для  $p$ -поляризованной и для  $s$ -поляризованной накачки регистрировались в разных условиях по средней мощности фемтосекундного лазера, по размеру пятна излучения накачки на образце, а также разным усилениям ФЭУ. Для удобства сравнения результатов эти сигналы приведены примерно к одной шкале, соответствующей наиболее слабому сигналу.

Зависимости сигнала второй гармоники от угла падения излучения накачки приведены на рис. 2 для  $p$ -поляризованной накачки и для  $s$ -поляризованной накачки. Ошибка в углах поворота анализатора составляла

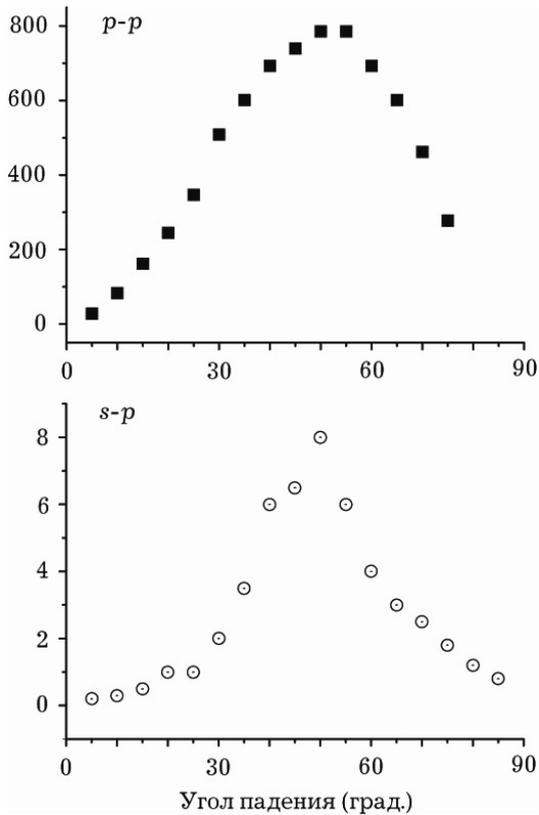


Рис. 2. Сигналы второй гармоники в зависимости для  $p$ - и  $s$ -поляризации накачки в зависимости от угла падения излучения

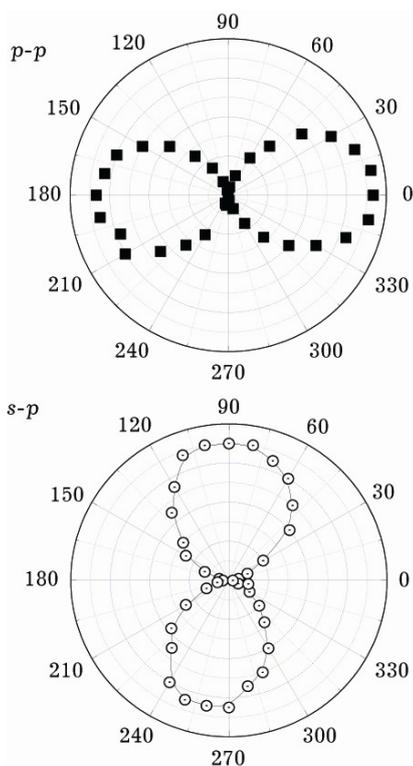


Рис. 3. Поляризационные диаграммы сигналов второй гармоники для двух типов линейной поляризации накачки

$\sim 2,5^\circ$ , ошибка в измерении амплитуды сигнала – 10 % от измеренной величины. В записи  $p$ - $p$  и  $s$ - $p$  первый символ обозначает поляризацию излучения накачки, второй – поляризацию излучения второй гармоники. Для обоих случаев вторая гармоника отсутствует при нормальном падении, а максимум достигается для угла падения излучения накачки примерно в  $50^\circ$ . Падение сигналов для углов более  $50^\circ$  объясняется потерями накачки на отражение. Амплитуды сигналов второй гармоники для случаев  $p$ - $p$  и  $s$ - $p$  существенно различаются.

Сигналы второй гармоники в данном образце были поляризованы всегда линейно и соответствовали  $p$ -типу поляризации. Поляризационные диаграммы показаны на рис. 3 для названных выше случаев; их форма указывает на линейный тип поляризации сигналов второй гармоники. Отклонения формы поляризационных диаграмм от идеальной «восьмерки», вероятнее всего, связаны с амплитудной нестабильностью излучения накачки. Горизонтальная ориентация поляризационной диаграммы сигнала второй гармоники для случая  $p$ -поляризованной накачки совпадает с поляризацией лазерного излучения. Для исследования сигнала второй гармоники для  $s$ -поляризации излучения накачки образец поворачивался так, чтобы накачка соответствовала именно этому типу. Поляризационная диаграмма второй гармоники на рис. 3 для этого случая ортогональна диаграмме лазерного излучения, т. е. соответствует  $p$ -поляризации излучения второй гармоники.

Для угла падения излучения накачки в 50 градусов и для ее  $p$ -поляризации (что соответствует максимальному сигналу второй гармоники, полученному в образце) проведено исследование зависимости сигнала второй гармоники излучения от средней мощности лазера накачки.

На рис. 4 точками представлены результаты измерений, пунктирной кривой – квадратичная зависимость с подгоночным параметром по амплитуде. Видно хорошее совпадение результатов измерений с квадратичной зависимостью. Максимальное значение интенсивности накачки, использованное в экспериментах, оценивалось по средней мощности, длительности импульсов, частоте следования фемтосекундного излучения, а также размеру перетяжки пучка излучения накачки в фокусе. По этой оценке в

200 МВт/см<sup>2</sup> можно утверждать, что в пределах такой интенсивности не наблюдается отклонения от квадратичной зависимости от интенсивности накачки в сигнале генерации второй гармоники.

Идеальный кристалл алюминий-галлий нитрида, выращенный на сапфире, должен иметь ось симметрии шестого порядка, что могло бы проявиться в сигнале второй гармоники излучения в виде азимутальной зависимости. В наших экспериментах не удалось обнаружить азимутальную зависимость. В процессе поиска этой зависимости было обнаружено нерегулярное изменение сигнала второй гармоники, что может быть объяснено неоднородностью образца. Некоторое представление о латеральной неоднородности оптических свойств исследуемого кристалла  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  дает рис. 5. Угол падения излучения накачки фиксировался, и сам образец сканировался под сфокусированным пучком накачки.

На рис. 5 показаны сигналы второй гармоники в зависимости от смещения образца. Средняя мощность излучения накачки контролировалась по сигналу, прошедшему через образец и выделенному кварцевой призмой. При обнаружении отклонений от постоянной величины для каждой измеренной точки проводилась коррекция сигнала по квадратичной зависимости. Кроме того, для каждой точки проводился поиск максимального значения сигнала второй гармоники путем микроперемещений фокусирующей линзы вдоль фокуса. По данным рис. 5 определено среднеквадратичное отклонение сигнала второй гармоники от среднего значения; по 12 точкам образца эти отклонения не превышали 5 %.

### Обсуждение результатов

Измеренные в [8] значения двух компонент тензора нелинейной восприимчивости второго порядка пленки AlN в области ИК накачки на длине волны 1064 нм (0,62 и 0,0013 пм/В) весьма малы, чтобы учитывать влияние этого слоя толщиной 170 нм на результаты измерений в нашем образце. Для подложки из сапфира ориентации (0001) не удалось найти данные по значениям нелинейной восприимчивости второго порядка объемного материала для накачки в ИК диапазоне спектра; имеются лишь данные по генерации второй гармоники на границе

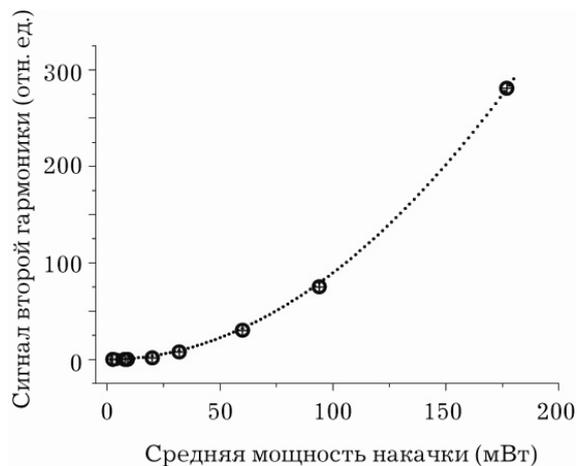


Рис. 4. Зависимость сигналов второй гармоники от мощности излучения накачки

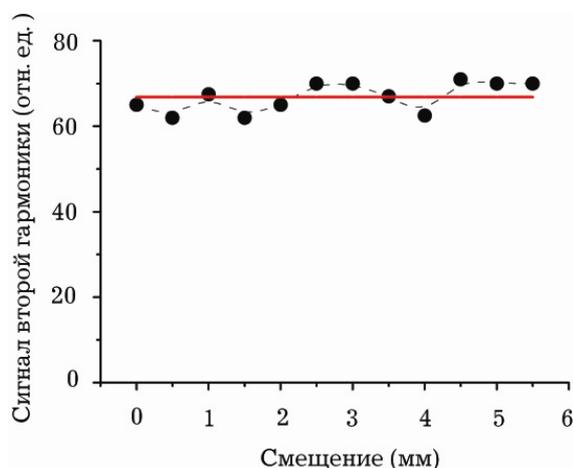


Рис. 5. Зависимость сигналов второй гармоники от латерального смещения образца

сапфира с кремнием [9] и сапфира с германием [10]. В образце монокристаллического сапфира не удалось зарегистрировать вторую гармонику излучения с доступной чувствительностью регистрации. В связи с этим полученные в данной работе результаты мы относим, главным образом, к слою  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$ .

В отличие от нашей работы [11], где исследованы азимутальные зависимости сигналов второй гармоники для квантовых ям InGaAs, а также подложки GaAs, для образца  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  не удалось зарегистрировать азимутальной зависимости. Известно, что кристаллы  $Al_xGa_{1-x}N$  обычно растут в виде доменов разной ориентации с латеральными размерами не более 100 нм. Так как в наших экспериментах пятно фокусировки излуче-

ния накачки было существенно большего размера, отсутствие азимутальной зависимости сигналов второй гармоники в данном образце не удивительно. Изменение сигналов второй гармоники при латеральном перемещении образца под фокусом излучения накачки со среднеквадратичным отклонением менее 5 % от средней величины свидетельствует о достаточно высоком оптическом качестве исследованной пленки.

Найденные в данной работе зависимости сигналов второй гармоники от угла падения излучения накачки с максимумом для угла в  $50^\circ$  совпадают с результатами [7] и с другими известными нам литературными данными. Существенное различие в интенсивностях второй гармоники для случаев *p-p* и *s-p* находятся в качественном согласии с результатами [7; 12].

Для этого материала оценка ширины запрещенной зоны дает значение 3,66 эВ. В экспериментах с фемтосекундным лазерным излучением ИК диапазона мы не наблюдали деградации пленки  $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$ .

Для того же образца для накачки видимого диапазона был зарегистрирован сигнал второй гармоники в ультрафиолетовой области спектра. В качестве накачки использовалось излучение второй гармоники  $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$  лазера с модуляцией добротности на длине волны 532 нм. Поляризационная диаграмма второй гармоники была зарегистрирована для существенно ослабленной интенсивности накачки для случая *p-p*. Для излучения накачки с длительностью импульсов 15 нс, энергией импульсов 10 мДж при фокусировке на образец в пятно с диаметром около 1 мм наблюдалось разрушение пленки. В этом случае излучение накачки было достаточно интенсивным, а удвоенная энергия квантов излучения накачки превышала ширину запрещенной зоны материала  $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$ . Трудно дать точную оценку пороговой интенсивности (или поверхностной плотности энергии) излучения накачки видимого диапазона, приводящей к разрушению пленки, так как импульсы лазера с модуляцией добротности имели нестабильную форму с нерегулярно возникающими множественными импульсами, а также с неравномерным поперечным распределением интенсивности пучка излучения. Исследование с помощью быстродействующего фотоприемника (ФЭК-22) показало, что временной профиль импульса имеет структуру, со-

стоящую из нескольких пиков длительностью  $\approx 1\div 2$  нс (до 3-х пиков по полувысоте основного импульса). Глубина модуляции от импульса к импульсу флуктуировала. Поэтому плотность мощности излучения накачки в ряде случаев могла превышать порог разрушения образца. Вероятные механизмы разрушения связаны с многофотонным поглощением излучения накачки с последующим перегревом и разрушением тонкой пленки.

Повреждение пленки мощным инфракрасным излучением в данной работе не рассматривалось, хотя интерес к механизму оптического повреждения нитридов галлия и алюминия мощным излучением ИК диапазона существует. Так, в [13] показано, что порог оптического повреждения пленки проводящего нитрида галлия в десять раз выше порога повреждения оксида индия-олова, применяемого в качестве прозрачных электродов.

В заключение отметим, что разработанная нами техника генерации второй гармоники (при умеренной пиковой и средней мощности инфракрасного фемтосекундного излучения) вполне может использоваться для диагностики новых полупроводниковых материалов, даже достаточно широкозонных.

### Список литературы

1. Борисов Г. М., Гольдорт В. Г., Ковалёв А. А., Ледовских Д. В., Рубцова Н. Н. Фемтосекундная кинетика отражения зеркал с насыщающимся поглощением // *Автоматрия*. 2016. Т. 52, № 2. С. 52–56.
2. Kisel' V. E., Rudenkov A. S., Pavlyuk A. A., Kovalyov A. A., Preobrazhenskii V. V., Putyato M. A., Rubtsova N. N., Semyagin B. R., Kuleshov N. V. High power efficient SESAM-mode-locked Yb:KGW bulk laser // *Optics Letters*. 2015. Vol. 40. No. 12. P. 2707–2710.
3. Kovalyov A. A., Preobrazhenskii V. V., Putyato M. A., Rubtsova N. N., Semyagin B. R., Kisel' V. E., Rudenkov A. S., Kuleshov N. V., Pavlyuk A. A. Efficient high power femtosecond Yb<sup>3+</sup>:KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser // *Laser Physics Letters*. 2015. No. 12. P. 075801 (4 p).
4. Бохан П. А., Журавлёв К. С., Закревский Дм. Э., Малин Т. В., Осинных И. В., Фатеев Н. В. Усиление излучения в легированных AlGaIn структурах при оптической накачке // *Письма в ЖТФ*. 2017. Т. 43, вып. 1. С. 1–4.

5. Aleksandrov I. A., Zhuravlev K. S. Energy structure and radiative lifetimes of InGaN/AlN quantum dots // Superlattices and Microstructures. 2018. No. 113. P. 373–378.

6. Асаки И. Увлекательные приключения в поисках синего света // УФН. 2016. Т. 187, № 5. С. 504–517.

7. Sanford N. A., Davydov A. V., Tsvetkov D. V., Dmitriev A. V., Keller S., Mishra U. K., DenBaars S. P., Park S. S., Han J. Y., Molnar R. J. Measurement of second order susceptibilities of GaN and AlGaIn // Journal of Applied Physics. 2005. No. 97. P. 053512 (13 p).

8. Fujii Y., Yoshida S., Misawa S., Maekawa S., Sakudo T. Nonlinear optical susceptibilities of AlN film // Applied Physics Letters. 1977. No. 31. P. 814–816.

9. Fomenko V., Gusev E. P., Borguet E. Optical second harmonic generation studies of ultrathin high- $k$  dielectric stacks // J. Appl. Phys. 2005. No. 97. P. 083711 (7 p).

10. Vanbel M., Delabie A., Sioncke S., Adelman Ch., Afanas'ev V., Locquet J. P., Van Elshocht S., Caymax M., Verbiest T. Second-harmonic generation as characterization tool for

Ge/high- $k$  dielectric interfaces // Proc. SPIE. Nonlinear Optics and Applications VI. 2012. Vol. 8434. P. 84341F.

11. Борисов Г. М., Гольдорт В. Г., Ковалёв А. А., Кочубей С. А., Ледовских Д. В., Преображенский В. В., Пулято М. А., Рубцова Н. Н., Семягин Б. П. Особенности генерации второй гармоники излучения фемтосекундного лазера  $\text{Yb}^{3+}:\text{KY}(\text{WO}_4)_2$  в гетероструктурах  $\text{A}_3\text{B}_5$  с асимметричными квантовыми ямами // Вестн. НГУ. Серия: Физика. 2014. Т. 9, вып. 4. С. 5–14.

12. Miragliotta J., Wickenden D. K., Kistnermacher T. J., Bryden W. A. Linear and nonlinear optical properties of GaN thin films // JOSA B. 1993. Vol. 10. No. 8. P. 1447–1456.

13. Elhadj S., Yoo J.-H., Negtes R. A., Menor M. G., Adams J. J., Shen N., Cross D. A., Bass I. L., Bude J. D. Optical damage performance of conductive widegap semiconductors: spatial, temporal, and lifetime modeling // Optical Materials Express. 2017. Vol. 7. No. 1. P. 202–212.

Материал поступил в редколлегию 15.03.2018

**G. M. Borisov**<sup>1,2</sup>, **V. G. Gol'dort**<sup>1</sup>, **K. S. Zhuravlev**<sup>1</sup>, **A. A. Kovalyov**<sup>1</sup>,  
**S. A. Kochubei**<sup>1</sup>, **D. V. Ledovskikh**<sup>1</sup>, **T. V. Malin**<sup>1</sup>, **N. N. Rubtsova**<sup>1</sup>

<sup>1</sup> A. V. Rzhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS  
13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation

<sup>2</sup> Novosibirsk State University  
2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation

rubtsova@isp.nsc.ru

## SECOND HARMONIC GENERATION IN $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$ THIN FILM

Second harmonic of femtosecond laser  $\text{Yb}^{3+}:\text{KY}(\text{WO}_4)_2$  generated in transmission of thin film  $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$  grown on sapphire monocrystal of (0001) orientation does not reveal any saturation up to infrared pumping intensity  $200 \text{ MW/cm}^2$ . The  $p$ -polarized second harmonic radiation was detected both for  $p$ -polarized and  $s$ -polarized pumping radiation; the second harmonic signal is essentially lower in the second case. In both cases, the second harmonic signal is absent at normal incidence, and it reaches maximum value at incidence angle of about 50 degree with further decrease. Lateral non-homogeneity was detected at 5 % level; absence of azimuth dependence corresponding to sixth order symmetry axis is considered.

**Keywords:** second harmonic generation, nano-size  $\text{A}_3\text{B}_5$  semiconductor materials.

*For citation:*

Borisov G. M., Gol'dort V. G., Zhuravlev K. S., Kovalyov A. A., Kochubei S. A., Ledovskikh D. V., Malin T. V., Rubtsova N. N. Second Harmonic Generation in  $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$  Thin Film. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 64–69. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-64-69

**Н. В. Сидоров, Н. А. Теплякова, Р. А. Титов, М. Н. Палатников**

*Институт химии и технологии редких элементов и минерального сырья  
им. И. В. Тананаева ФИЦ «КНЦ РАН»  
ул. Академгородок, 26а, Апатиты, Мурманской обл., 184209, Россия*

*sidorov@chemy.kolasc.net.ru*

## **СТРУКТУРНЫЙ БЕСПОРЯДОК И ОПТИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ КОНГРУЭНТНЫХ КРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ, ВЫРАЩЕННЫХ ИЗ РАСПЛАВОВ, ЛЕГИРОВАННЫХ БОРОМ**

По концентрационной зависимости ширины и интенсивности линий спектра комбинационного рассеяния света обнаружено изменение порядка чередования основных катионов и вакансий вдоль полярной оси кристалла и «возмущение» кислородных октаэдров кристаллов ниобата лития, выращенных из конгруэнтного расплава, легированного неметаллическим элементом – бором. При этом бор не входит в структуру кристалла. Показано, что «возмущение» кислородных октаэдров носит анизотропный характер и связано с их расширением вдоль полярной оси. Номинально чистые кристаллы ниобата лития, выращенные из конгруэнтного расплава, легированного бором, характеризуются структурной однородностью, более высокой, чем номинально чистые конгруэнтные кристаллы, а по количеству дефектов  $Nb_{Li}$  близки к кристаллу стехиометрического состава, отличаясь от него существенно меньшим эффектом фоторефракции.

*Ключевые слова:* ниобат лития, расплав, легирование, фоторефрактивный эффект, комбинационное и фотоиндуцированное рассеяние света, лазерная коноскопия.

### **Введение**

В настоящее время актуальны исследования, направленные на оптимизацию структуры и свойств кристалла ниобата лития ( $LiNbO_3$ ), на создание оптически высококачественных монокристаллов с предельно низким эффектом фоторефракции и величиной коэрцитивного поля [1–11]. Кристалл ниобата лития относится к важнейшим нелинейно-оптическим, пьезо-, пиро- и сегнетоэлектрическим материалам и находит широкое применение в различных устройствах электронной техники и нелинейной оптики [11; 12]. Кристалл ниобата лития является нестехиометрическим кислородно-октаэдрическим сегнетоэлектриком с широкой областью гомогенности на фазовой диаграмме (44,5–50,5 мол. %  $Li_2O$  при 1460 К)

и фактически должен рассматриваться как твердый раствор  $LiNbO_3:Nb$  [13; 14]. Октаэдрическая координация в структуре кристалла металлических катионов ионами кислорода допускает значительные геометрические «возмущения» кислородных октаэдров  $BO_6$  ( $B = Li^+, Nb^{5+}$ , легирующий металлический катион) без изменения их симметрии, что проявляется в высокой аккомодационной способности структуры по отношению к металлическим легирующим добавкам. Как фаза переменного состава сегнетоэлектрический кристалл ниобата лития, характеризуется широко развитой дефектной структурой. В формировании эффекта фоторефракции (optical damage) ведущая роль отводится дефектам с локализованными на них электронами, формирующими фотоэлектрические поля. Кри-

*Сидоров Н. В., Теплякова Н. А., Титов Р. А., Палатников М. Н.* Структурный беспорядок и оптические характеристики конгруэнтных кристаллов ниобата лития, выращенных из расплавов, легированных бором // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 2. С. 70–79.

сталл характеризуется высокими значениями напряженности фотоэлектрических полей и высоким эффектом фоторефракции, который можно регулировать в широких пределах [1; 11; 12]. Одним из способов повышения оптической стойкости конгруэнтных кристаллов  $\text{LiNbO}_3$  является легирование металлическими «нефоторефрактивными» катионами<sup>1</sup> с получением кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{Me}$  (Me: Zn, Mg, In и др.) [11]. Влияние «нефоторефрактивных» металлических легирующих добавок на свойства ниобата лития основано на «регулировании» ими содержания и координации в кристалле точечных структурных дефектов катионной подрешетки и связанных с ними молекулярных комплексов [9; 11; 12; 15; 16]. При этом дефекты  $\text{Nb}_{\text{Li}}$  (катионы  $\text{Nb}^{5+}$ , находящиеся в позициях катионов  $\text{Li}^+$  идеальной структуры стехиометрического состава ( $R = \text{Li}/\text{Nb} = 1$ )), наряду с примесями переходных металлов (например,  $\text{Fe}^{2+} - \text{Fe}^{3+}$ ) являются глубокими ловушками электронов и наиболее сильно влияют на эффект фоторефракции [11; 12]. Помимо дефектов  $\text{Nb}_{\text{Li}}$  в структуре существует множество других дефектов в виде мелких ловушек электронов, также влияющих на эффект фоторефракции в кристаллах с низким эффектом фоторефракции [17]. Необходимо отметить, что легирование металлическими катионами в значительных концентрациях неизбежно приводит к значительному повышению оптической и структурной неоднородности монокристалла [9; 11; 12; 15; 16; 18].

Неметаллические катионы, обладающие иными, чем у металлических катионов, механизмами химической связи и, как следствие, другими механизмами влияния на физические характеристики системы кристалл-расплав, не способны входить в кислородные октаэдры структуры кристалла  $\text{LiNbO}_3$ . Так, неметаллический элемент бор характеризуется крайне низким коэффициентом вхождения в октаэдрические пустоты  $\text{O}_6$  структуры  $\text{LiNbO}_3$  ( $K_p \ll 1$ ). При содержании около 1–2 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в расплаве, в кристалле будет присутствовать лишь около  $4 \cdot 10^{-4}$  мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$ , что соответствует кон-

центрации многочисленных посторонних следовых примесей (Zr, Mo, Ca, Fe, Ti, Si и др.) [19–21].

По причине незначительного вхождения неметаллических элементов в структуру кристалла исследования их влияния на структуру и физические характеристики кристаллов  $\text{LiNbO}_3$  практически не проводились. Однако есть основания полагать, что неметаллические элементы будут изменять физические характеристики расплава и тем самым изменять тонкие особенности структуры кристалла. Так, в работах [19; 22] установлено, что температура Кюри ( $T_c$ ) кристаллов  $\text{LiNbO}_3$ , выращенных из шихты, содержащей бор, возрастает ~ на  $47^\circ\text{C}$ , а температура плавления – примерно на  $10^\circ\text{C}$  по сравнению с номинально чистым конгруэнтным кристаллом. Это может свидетельствовать об изменении (по сравнению с конгруэнтным кристаллом) вязкости расплава, а также структуры и размеров кластеров в расплаве, вследствие присутствия бора.

При изменении состава кристалла в пределах области гомогенности изменяется преимущественно вторичная структура кристалла  $\text{LiNbO}_3$ . Исследование изменений вторичной структуры кристалла  $\text{LiNbO}_3$ , возникающих при изменении состава, представляет несомненный интерес, поскольку именно ее состояние в значительной степени определяет особенности фоторефрактивных, нелинейно-оптических и других характеристик кристалла [15]. Информативен подход к исследованию изменений вторичной структуры кристалла, его оптической и структурной однородности с использованием комплекса методов: спектроскопии комбинационного рассеяния света (КРС), лазерной коноскопии и фотоиндуцированного рассеяния света [6; 8–11; 15; 18].

В данной работе по спектрам КРС, чувствительным к изменению взаимодействий между структурными единицами кристалла, исследованы структурные перестройки в серии монокристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (0,55÷1,24 мол. % в шихте), возникающие при изменении концентрации легирующей добавки. Оптическая и структурная однородность кристаллов исследована методами фотоиндуцированного рассеяния света (ФИРС) и лазерной коноскопии. Результаты для кристаллов, легированных  $\text{B}^{3+}$ , сравнивались с результатами, полученными для номинально чистых стехиометрических ( $\text{Li}/\text{Nb} = 1$ )

<sup>1</sup> «Нефоторефрактивные» катионы в отличие от многозарядных «фоторефрактивных» катионов не изменяют свое зарядовое состояние в кристалле (не являются донорами электронов) под действием оптического излучения.

и конгруэнтных кристаллов ( $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$  и  $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$  соответственно).

### Методика эксперимента

Номинально чистые конгруэнтные кристаллы  $\text{LiNbO}_3$  и  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (0,55–1,24 мол. % в шихте) выращивались из расплава конгруэнтного состава [5]. Легирование при получении монокристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  осуществлялось как путем добавления легирующей примеси в реэкстракт при получении особо чистого пентаоксида ниобия ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ) [5], так и методом твердофазной лигатуры [19; 22]. Борсодержащий реагент (борную кислоту) вводили непосредственно в ниобиевый реэкстракт, полученный в процессе экстракционного передела технической гидроокиси ниобия до высокочистой. При этом для успешного выращивания кристаллов высокого оптического качества с низким эффектом фоторефракции концентрация бора не должна превышать  $\sim 0,1$  мас. % в расплаве [19]. При большем содержании бора значительно увеличивается вязкость расплава, и в выращенных кристаллах наблюдаются макродефекты, существенно ухудшающие оптическое качество кристалла [19; 22]. С использованием легированного прекурсора  $\text{Nb}_2\text{O}_5:\text{B}$  была синтезирована шихта ниобата лития, из которой была выращена затем серия монокристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (0,55–1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте). Содержание микропримесей в кристалле составляло: Pb, Ni, Cr, Co, V, Ti, Fe, Al менее  $2 \cdot 10^{-4}$ , Ca, Si, F менее  $1 \cdot 10^{-3}$  мас. %. Выращивание кристалла  $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$  осуществлялось из расплава с 58,6 мол. %  $\text{Li}_2\text{O}$ . При выращивании  $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$  использовалась оригинальная гранулированная шихта, синтезированная в ИХТРЭМС КНЦ РАН, позволяющая получать абсолютно бесцветные (water white) номинально чистые монокристаллы [23]. Все кристаллы выращивались в воздушной атмосфере методом Чохральского на установке «Кристалл-2», снабженной системой автоматического контроля диаметра кристалла.

Все выращенные монокристаллы были монодоменизированы посредством высокотемпературного электродиффузионного отжига путем приложения постоянного тока при охлаждении кристаллов со скоростью 20 град./час в температурном интервале  $\sim 1240\text{--}880$  °С. Контроль степени монодоменичности осуществлялся методом анализа

частотной зависимости электрического импеданса и путем определения величины статического пьезомодуля ( $d_{33\text{ст}}$ ) кристаллической були. Образцы для исследований вырезались из монодоменизированных кристаллов в форме параллелепипедов ( $7 \times 6 \times 5$  мм<sup>3</sup>), ребра которых совпадали по направлению с кристаллофизическими осями X, Y, Z (Z – полярная ось кристалла). Грани параллелепипедов тщательно полировались.

Спектры КРС возбуждались линией 514,5 нм аргонового лазера Spectra Physics (модель 2018-RM) и регистрировались спектрографом T64000 производства фирмы «Horiba Jobin Yvon» с использованием конфокального микроскопа. Чтобы уменьшить влияние эффекта фоторефракции на спектр КРС, спектры возбуждались излучением малой мощности. Мощность возбуждающего лазерного излучения под микроскопом не превышала 3 мВт. Все спектры регистрировались с разрешением  $1,0$  см<sup>-1</sup>. Обработка спектров производилась с использованием пакета программ Horiba LabSpec 5.0 и Origin 8.1. Точность определения частоты, ширины и интенсивности линий  $\pm 1,0$ ,  $\pm 3,0$  см<sup>-1</sup> и 5 % соответственно. Методика исследований ФИРС и лазерной коноскопии подробно описаны в работах [9; 18; 24]. В экспериментах по ФИРС и лазерной коноскопии применялся лазер Nd:YAG (MLL-100) с длиной волны 532 нм и мощностью от 1 до 160 мВт.

### Результаты и их обсуждение

На рис. 1 приведены спектры КРС кристаллов  $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ ,  $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$ ,  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (0,55÷1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте), соответствующие фундаментальным колебаниям кристаллической решетки, в геометрии рассеяния  $Y(ZX)\bar{Y}$  и  $Y(ZZ)\bar{Y}$ . В таблице приведены основные параметры линий, проявляющихся в спектрах КРС монокристаллов  $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ ,  $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$  и  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (0,55÷1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте), зарегистрированных в геометрии рассеяния  $Y(ZX)\bar{Y}$  (активны фононы E(TO) типа симметрии). На рис. 2 показаны изменения ширины, интенсивности линий с частотой 576 и 630 см<sup>-1</sup> в спектре КРС и угла  $\theta$  раскрытия спекл-структуры ФИРС. При этом значения частоты линий в пределах ошибок эксперимента оставались постоянными, что свидетельст-

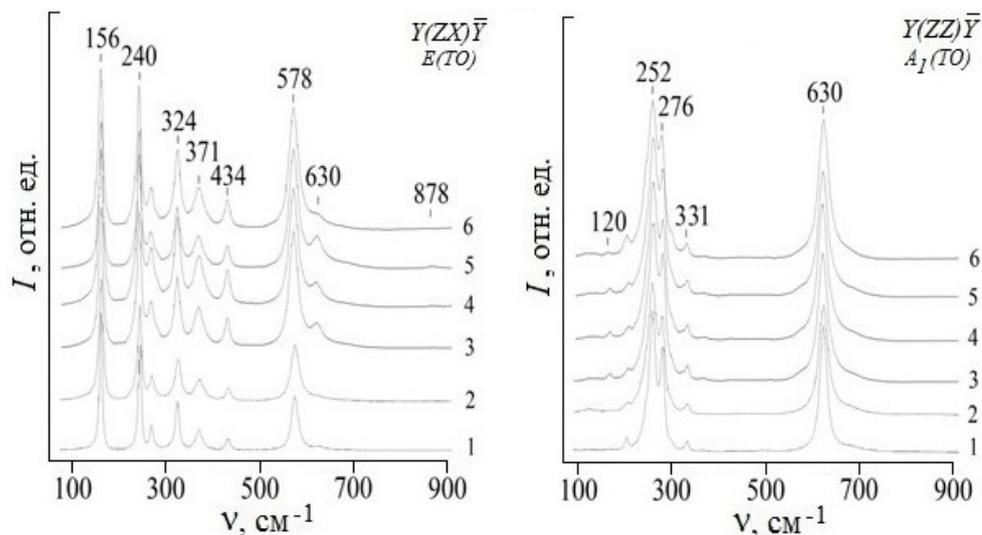


Рис. 1. Спектры КРС кристаллов: LiNbO<sub>3</sub>стех (1), LiNbO<sub>3</sub>конг (2) и LiNbO<sub>3</sub>:B (0,55 (3), 0,69 (4), 0,83 (5), 1,24 (6) мол. % В<sub>2</sub>О<sub>3</sub>) в геометрии рассеяния Y(ZX)Ȳ и Y(ZZ)Ȳ

вует о малости влияния эффектов изменения вторичной структуры, возникающих при изменении отношения Li/Nb и концентрации легирующего катиона В<sup>3+</sup>, на квазиупругие постоянные решетки кристалла LiNbO<sub>3</sub>. Из рис. 1, 2 и таблицы видно, что изменения в поведении ширины и интенсивности спектральных линий при изменении состава кристаллов LiNbO<sub>3</sub>:B наблюдаются во всем спектре: в области колебаний катионов, находящихся в кислородных октаэдрах ВО<sub>6</sub> (В – Nb, Li, легирующий катион) (200÷300 см<sup>-1</sup>), в области колебаний атомов кислорода кислородных октаэдров (500÷900 см<sup>-1</sup>).

Полученные данные свидетельствуют о том, что при изменении состава кристалла происходит изменение порядка чередования основных, легирующих катионов и вакансий вдоль полярной оси кристалла, «возмущение» октаэдров ВО<sub>6</sub>.

Спектры КРС кристаллов LiNbO<sub>3</sub>:B (0,55–1,24 мол. % В<sub>2</sub>О<sub>3</sub> в шихте) исследовались ранее в работах [20; 21; 25; 26]. Основное внимание было уделено влиянию структурного беспорядка катионной подрешетки на фононы А<sub>1</sub>(ТО) типа симметрии в геометрии рассеяния Y(ZZ)Ȳ и проявлению эффекта фоторефракции в спектре КРС. При этом «возмущение» кислородных октаэдров О<sub>6</sub> структурным беспорядком катионной подрешетки не рассматривалось. В спектре кристалла LiNbO<sub>3</sub>стех, отличающегося наиболее

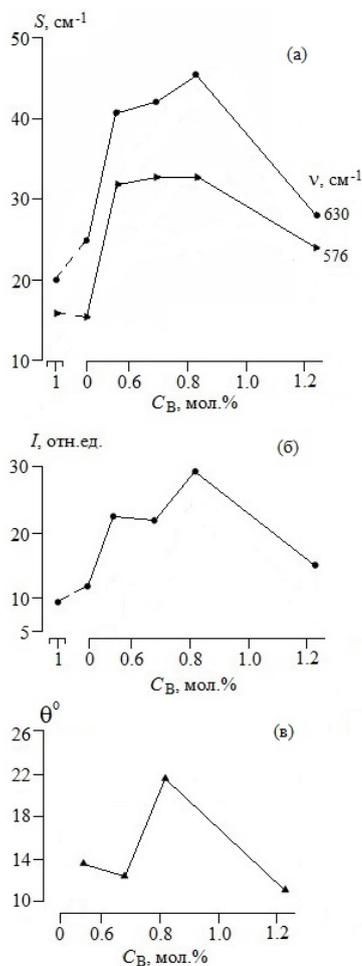


Рис. 2. Концентрационные зависимости ширины (S) (а), интенсивности (I) линий с частотой 576 и 630 см<sup>-1</sup> в спектре КРС (б) и угла θ раскрытия спекл-структуры ФИРС (в)

Основные параметры линий, проявляющихся в спектрах КРС  
монокристаллов  $\text{LiNbO}_3$ <sub>стех</sub>,  $\text{LiNbO}_3$ <sub>конг</sub> и  $\text{LiNbO}_3\text{:B}^{3+}$  (0,55–1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте),  
в геометрии рассеяния  $Y(ZX)\bar{Y}$  (E(TO))

$\text{LiNbO}_3$ <sub>стех</sub>		$\text{LiNbO}_3$ <sub>конг</sub>		$\text{LiNbO}_3\text{:B}$							
				(0,55 мол. %)		(0,69 мол. %)		(0,83 мол. %)		(1,24 мол. %)	
$\nu$	$S$	$\nu$	$S$	$\nu$	$S$	$\nu$	$S$	$\nu$	$S$	$\nu$	$S$
152	7	152	12	152	7	152	9	152	9	152	10
179											
240	9	240	11	41	9	241	11	240	10	240	11
268	10	268	14	270	13	271	12	270	13	270	13
324	10	324	13	325	12	324	14	324	14	323	16
371	17	371	23	371	24	370	24	370	26	371	26
434	10	434	14	432	9	432	10	432	11	432	14
578	16	576	15	575	32	576	33	576	33	575	24
611											
630	20	626	25	626	41	628	42	626	46	626	28
876	20	876	30	875	25	877	25	875	26	875	31

*Примечание.* Линии с частотой 630 и 876  $\text{см}^{-1}$  отвечают соответственно фононам  $A_1(\text{TO})$  и  $A_1(\text{LO})$  типа симметрии, неактивным в геометрии рассеяния  $Y(ZX)\bar{Y}$ , но проявляющимся в этой геометрии вследствие эффекта фоторефракции. Значения ширины малоинтенсивных линий с частотой 180 и 610  $\text{см}^{-1}$  в таблице не приведены ввиду больших ошибок их определения.

упорядоченной катионной подрешеткой, в геометрии рассеяния  $Y(ZX)\bar{Y}$  нами экспериментально обнаружены все 9 линий, соответствующие фононам E(TO) типа симметрии, разрешенные правилами отбора (см. таблицу). Малоинтенсивные линии с частотой 179 и 611  $\text{см}^{-1}$  в спектре нестехиометрических кристаллов  $\text{LiNbO}_3$ <sub>конг</sub> и  $\text{LiNbO}_3\text{:B}$  (0,55–1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте) «замазаны» эффектами разупорядочения структуры и не проявляются.

Из таблицы также видно, что значения ширины линий в спектре кристаллов  $\text{LiNbO}_3\text{:B}$ , соответствующие колебаниям внутриоктаэдрических катионов (150–300  $\text{см}^{-1}$ ), меньше, чем соответствующие значения ширины линий спектра кристалла  $\text{LiNbO}_3$ <sub>конг</sub>, а значения ширины линий с частотой 152 и 240  $\text{см}^{-1}$ , в пределах ошибок эксперимента, совпадают со значениями ширины линий в спектре кристалла  $\text{LiNbO}_3$ <sub>стех</sub>. В то же время ширина линии с частотой 578  $\text{см}^{-1}$ , соответствующей дважды вырожденным E(TO) колебаниям атомов кислорода октаэдров  $O_6$  в спектре кристаллов  $\text{LiNbO}_3\text{:B}$  (0,55–1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте) существенно больше, чем в спектре кристаллов  $\text{LiNbO}_3$ <sub>стех</sub> и  $\text{LiNbO}_3$ <sub>конг</sub>. Полученные данные свиде-

тельствуют о том, что даже при очень незначительном изменении концентрации бора в шихте (0,55–1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$ ) и, соответственно, в расплаве происходит заметное увеличение в кристалле  $\text{LiNbO}_3\text{:B}$  упорядочения структурных единиц катионной подрешетки вдоль полярной оси при одновременном «возмущении» октаэдров  $O_6$  структуры. При этом не наблюдается появление в спектре новых линий в области колебаний кислородных октаэдров, свидетельствующих об изменении их геометрии.

Согласно правилам отбора [11; 27], в геометрии рассеяния  $Y(ZX)\bar{Y}$  должны проявляться фундаментальные колебания только E(TO) типа симметрии, а в геометрии рассеяния  $Y(ZZ)\bar{Y}$  – фундаментальные колебания только  $A_1(\text{TO})$  типа симметрии. Однако вследствие наличия эффекта фоторефракции в геометрии  $Y(ZX)\bar{Y}$  в спектре кристалла  $\text{LiNbO}_3$  с интенсивностью, пропорциональной величине эффекта фоторефракции, дополнительно проявляются колебания  $A_1(\text{TO})$  типа симметрии, запрещенные правилами отбора для геометрии рассеяния  $Y(ZX)\bar{Y}$  [11]. При этом, как показано в работах [11; 28], наиболее удобной анали-

тической линией для оценки величины эффекта фоторефракции является линия с частотой  $630 \text{ см}^{-1}$ , соответствующая  $A_1(\text{TO})$  колебаниям атомов кислорода октаэдров  $\text{O}_6$ . Удобно использовать относительную интенсивность ( $I_{\text{отн}}$ ), определяемую по формуле  $I_{\text{отн}} = I_{630}/I_{580} \cdot 100 \%$ , поскольку интенсивность линии с частотой  $580 \text{ см}^{-1}$  ( $E(\text{TO})$ ), по крайней мере для кристаллов с низким эффектом фоторефракции, не изменяется при изменении эффекта фоторефракции [9; 10; 18; 28].

Вклад в увеличение ширины линий в спектре КРС при изменении состава кристалла  $\text{LiNbO}_3$  при постоянной температуре вносят, прежде всего, эффекты разупорядочения структуры [11; 27]. Вклад в изменение интенсивности линий вносят эффекты разупорядочения структуры и эффект фоторефракции [11; 27]. Из рис. 2 видно, что наименьшее значение относительная интенсивность линии с частотой  $630 \text{ см}^{-1}$  имеет в спектре кристаллов  $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$  и  $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$ , а наибольшее – в спектре кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  ( $0,55 \div 0,83$  мол. %). Причем в спектре кристалла  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  интенсивность линии с частотой  $630 \text{ см}^{-1}$  сначала возрастает с увеличением концентрации  $\text{B}^{3+}$ , а затем уменьшается (см. рис. 2). Кроме того, концентрационное поведение интенсивности линии с частотой  $630 \text{ см}^{-1}$  в геометрии рассеяния  $Y(\text{ZX})\bar{Y}$  в спектре кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  ( $0,55 \div 1,24$  мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте) и ширины линий с частотой  $630 \text{ см}^{-1}$  ( $A_1(\text{TO})$ ),  $576 \text{ см}^{-1}$  ( $E(\text{TO})$ ) хорошо коррелирует с концентрационным поведением угла  $\theta$  раскрытия спекл структуры ФИРС (см. рис. 2). Это однозначно указывает на то, что «возмущение» кислородных октаэдров вследствие изменения упорядочения структурных единиц катионной подрешетки и эффект фоторефракции в кристаллах  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  ( $0,55 \div 1,24$  мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте) зависят от концентрации бора в шихте. Полученные данные свидетельствуют о том, что элемент бор определенным образом структурирует расплав и из конгруэнтной шихты, легированной бором, фактически вырастает номинально чистый конгруэнтный монокристалл ниобата лития, имеющий заметные отличия в тонких особенностях структуры и физических характеристиках от номинально чистого конгруэнтного кристалла, выращенного

из номинально чистого конгруэнтного расплава.

Высокую оптическую однородность монокристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  ( $0,55 \div 1,24$  мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте) подтверждают коноскопические картины (рис. 3).

Только для кристалла  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  ( $0,83$  мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте) при сравнительно высокой мощности лазерного излучения ( $90 \text{ мВт}$ ) на коноскопической картине наблюдаются незначительные признаки аномальной оптической двуосности, связанные, возможно, с увеличением эффекта фоторефракции (см. рис. 3). При этом наиболее высокой стойкостью к оптическому повреждению, согласно

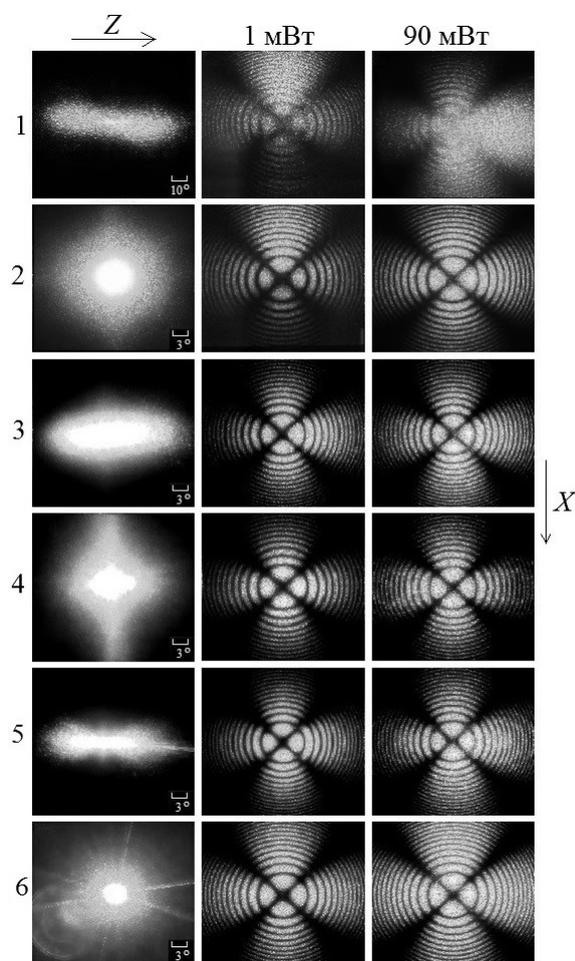


Рис. 3. Спекл-структура индикатрисы ФИРС ( $P = 160 \text{ мВт}$ ) и коноскопические картины ( $P = 1$  и  $90 \text{ мВт}$ ) кристаллов  $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$  (1),  $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$  (2),  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  ( $0,55$  (3),  $0,69$  (4),  $0,83$  (5),  $1,24$  (6) мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте). Время полного раскрытия спекл-структуры индикатрисы ФИРС для перечисленных кристаллов  $60 \text{ с}$

данным ФИРС, обладает кристалл  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте). Индикатриса спекл-структуры ФИРС для кристалла  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте), в отличие от индикатрисы спекл-структур остальных кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ , не раскрывается даже при мощности возбуждающего лазерного излучения в 160 мВт (см. рис. 3). Сравнительный коноскопический анализ исследованных кристаллов при использовании лазерного излучения мощностью 1 и 90 мВт, а также исследование ФИРС позволяют сделать вывод о том, что оптическая однородность кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  сравнима с таковой для кристалла  $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$  и значительно выше оптической однородности кристалла  $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$  (см. рис. 3). Необходимо отметить также, что эффект фоторефракции в  $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$  существенно больше, чем в конгруэнтном и в кристаллах  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (0,55–1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте). Для кристалла  $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$  характерен более значительный угол  $\theta$  раскрытия спекл-структуры индикатрисы ФИРС ( $56^\circ$ ). Для кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (0,55–1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте) угол  $\theta$  не превышает  $22^\circ$  (см. рис. 2, в; 3).

Согласно данным масс-спектрометрии, концентрация бора в кристалле  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  находится на уровне следовых количеств ( $\sim 10^{-4}$  мас. %). По этой причине бор, находящийся в кристалле в столь малых количествах, не может заметно влиять на тонкие особенности структуры, состояние дефектности кристаллической решетки и физические характеристики кристалла. Следовательно, столь заметные различия в свойствах кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$ ,  $\text{LiNbO}_{3\text{стех}}$  и  $\text{LiNbO}_{3\text{конг}}$  могут быть обусловлены влиянием легирующей добавки бора на структуру расплава.

При выращивании кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (0,55–1,24 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$  в шихте), исследованных в данной работе, нами качественно было отмечено увеличение вязкости расплава, возрастание температуры плавления  $\sim$  на  $10^\circ\text{C}$ , а температуры Кюри  $\sim$  на  $50^\circ\text{C}$  по сравнению с номинально чистым конгруэнтным кристаллом [19].

Можно предположить, что борсодержащие полианионы, образуя устойчивые в расплаве ковалентные связи с ниобийсодержащими полианионами, связывая тем самым избыток ниобия, увеличивают соотношение  $\text{Li}/\text{Nb}$  в расплаве, в результате выращенный кристалл приближается к стехиометриче-

скому кристаллу по степени упорядочения катионной подрешетки, так же, как это происходит при использовании флюса  $\text{K}_2\text{O}$ . Такой кристалл характеризуется пониженным содержанием дефектов  $\text{Nb}_{\text{Li}}$  и литиевых вакансий ( $V_{\text{Li}}$ ). Это предположение подтверждается увеличением температуры Кюри ( $T_{\text{К}}$ ) кристалла  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  ( $[\text{B}] \sim 0,1$  мас. % в расплаве) на  $\sim 47^\circ\text{C}$  по сравнению с конгруэнтным кристаллом [19]. Для сравнимого по величине изменения  $T_{\text{К}}$  кристалла  $\text{LiNbO}_3$ , легированного металлическими примесями ( $\text{Mg}$ ,  $\text{Zn}$  и т. п.), требуются существенно большие концентрации легирующей добавки ( $\sim 2\text{--}3$  мас. %).

Кроме того, в [29] было показано, что расплавы неорганических полимеров, образующие цепочечные и кольцевые структуры с включением ионов растворяемого вещества ( $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ ,  $\text{Li}_6\text{B}_4\text{O}_9$  и др.) и склонные образовывать стёкла, проявляют себя в качестве хороших растворителей, способных извлекать различные элементы из расплава. Например, в работе [30] сообщается об образовании высокотемпературного малорастворимого бората  $\text{Al}_5\text{BO}_9$ , т. е. из расплава удаляется изрядное количество  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Можно предположить, что катионы металлов, присутствующие в расплаве ниобата лития, легированного бором и способные переходить в структуру выращенного кристалла в виде неконтролируемых примесей [31], также будут удаляться соединениями бора из расплава, в результате чего выращенный кристалл ниобата лития будет более совершенным.

## Заключение

В спектрах КРС при изменении состава кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  обнаружены изменения в области колебаний катионов ( $200\div 300\text{ см}^{-1}$ ), находящихся в кислородных октаэдрах  $\text{BO}_6$  ( $\text{B} - \text{Nb}$ ,  $\text{Li}$ ,  $\text{B}$ ) и в области колебаний кислородных октаэдров ( $500\div 900\text{ см}^{-1}$ ), что свидетельствует об изменении порядка чередования основных, легирующих катионов и вакансий вдоль полярной оси кристалла и о «возмущении» кислородных октаэдров. По концентрационной зависимости ширины линий, соответствующих фундаментальным колебаниям в кристаллах  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  (1,39–2,0 мол. %  $\text{B}_2\text{O}_3$ ) обнаружено наличие области повышенного упорядо-

чения структурных единиц катионной подрешетки. Для этой области характерно пониженное количество дефектов  $\text{Nb}_{\text{Li}}$ , вследствие чего кристалл характеризуется более низким эффектом фоторефракции, чем обычный конгруэнтный кристалл, выращенный без добавок в расплав бора.

Полученные результаты позволяют расширить понятие «легирование». Под легированием, как правило, подразумевают введение непосредственно в структуру кристалла в заметном количестве легирующих добавок с целью изменения физических свойств материала. Неметаллический элемент бор не входит в структуру кристалла  $\text{LiNbO}_3$ . Несмотря на высокое содержание элемента бора в шихте (до 2,0 мол. %), его концентрация в кристалле находится на уровне следовых количеств, т. е. на порядки ниже концентрации легирующих металлических добавок. Отсутствие бора в структуре кристаллов можно объяснить малым размером радиуса катиона  $\text{B}^{3+} \sim 0,2 \text{ \AA}$  (ионные радиусы  $\text{Li}^+$  и  $\text{Nb}^{5+} = 0,68 \text{ \AA}$ ), невозможностью октаэдрической координации иона  $\text{B}^{3+}$  по кислороду в структуре кристалла ниобата лития (как у иона  $\text{Nb}^{5+}$ ), а также невозможностью образовать ионное взаимодействие с кислородом (как ион  $\text{Li}^+$  или ионы легирующих металлов  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  и т. д.). Оксидные соединения бора как сильные комплексообразователи и растворители оказывают заметное влияние на структуру и физические характеристики расплава, а следовательно, на структуру выращенного кристалла. Для кристалла  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  наблюдается увеличение температуры плавления по сравнению с номинально чистым кристаллом ниобата лития конгруэнтного состава. Определенным образом структурируя расплав, примесь бора уменьшает количество дефектов  $\text{Nb}_{\text{Li}}$  и, вероятно, снижает содержание неконтролируемых примесей, тем самым понижает эффект фоторефракции в монокристалле, повышает его структурную и оптическую однородность.

Таким образом, нами впервые осуществлен подход к получению монокристаллов  $\text{LiNbO}_3$  с заданными свойствами, когда определенным образом химически активным элементом структурируется расплав, но при этом легирующая добавка не входит в структуру кристалла. Этот подход позволяет путем направленного структурирования расплава получать номинально чистые кри-

сталлы  $\text{LiNbO}_3$ , обладающие такими же свойствами, как и легированные кристаллы, но по упорядочению структурных единиц катионной подрешетки и дефектам  $\text{Nb}_{\text{Li}}$  приближающиеся к кристаллу стехиометрического состава. В то же время монокристаллы  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  обладают существенно меньшим эффектом фоторефракции, чем стехиометрические кристаллы.

### Список литературы

1. Aillerie M., Bourson P., Mostefa M., Abdi F., Fontana M. D. Photorefractive damage in congruent  $\text{LiNbO}_3$  // J. Phys.: Conf. Ser. 2013. Vol. 416. P. 012001–012032.
2. Zhao L., Wang X., Wang B., Wen W., Zhang T.-Y. ZnO-doped  $\text{LiNbO}_3$  single crystals studied by X-ray and density measurements // Appl. Phys. B. 2004. Vol. 78, № 6. P. 769–774.
3. Zhang Y., Xu Y. H., Li M. H., Zhao Y. Q. Growth and properties of Zn doped lithium niobate crystal // J. Cryst. Growth. 2001. Vol. 233. P. 537–540.
4. Черная Т. С., Волк Т. Р., Верин И. А., Симонов В. И. Пороговые концентрации в допированных цинком кристаллах ниобата лития и их структурная обусловленность // Кристаллография. 2008. Т. 53, № 4. С. 612–617.
5. Palatnikov M. N., Biryukova I. V., Masloboeva S. M., Makarova O. V., Manukovskaya D. V., Sidorov N. V. The Search of Homogeneity of  $\text{LiNbO}_3$  Crystals Grown of Charge with Different Genesis // J. Cryst. Growth. 2014. Vol. 386. P. 113–118.
6. Palatnikov M. N., Biryukova I. V., Makarova O. V., Sidorov N. V., Efremov V. V., Efremov I. N., Teplyakova N. A., Manukovskaya D. V. Research of Concentration Conditions for Growth of Strongly Doped  $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$  Single Crystals // Advanced Materials – Manufacturing, Physics, Mechanics and Applications, Ivan A. Parinov, Shun-Hsyung, Vtaly Yu. Topolov (Eds.). Springer, Heidelberg, New York, Dordrecht, London. 2016. Vol. 175. P. 87–99.
7. Палатников М. Н., Бирюкова И. В., Макарова О. В., Ефремов В. В., Кравченко О. Э., Скиба В. И., Сидоров Н. В., Ефремов И. Н. Выращивание сильно легированных кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{Zn}$  // Неорг. матер. 2015. Т. 51, № 4. С. 428–432.
8. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Теплякова Н. А., Габаин А. А., Ефремов И. Н. Структурная однородность и фоторефрак-

тивные свойства кристаллов ниобата лития, легированных цинком // Персп. матер. 2015. № 7. С. 5–14.

9. Сидоров Н. В., Пикуль О. Ю., Крук А. А., Теплякова Н. А., Яничев А. А., Палатников М. Н. Комплексные исследования структурной и оптической однородности кристаллов ниобата лития с низким эффектом фоторефракции методами коноскопии, фотоиндуцированного светорассеяния и комбинационного рассеяния // Опт. и спектр. 2015. Т. 118, № 2. С. 273–282.

10. Sidorov N. V., Kruk A. A., Pikoul O. Y., Palatnikov M. N., Teplyakova N. A., Yanichev A. A., Makarova O. V. Integrated Research of Structural and Optical Homogeneities of the Lithium Niobate Crystal with Low Photorefractive Effect // Optik – International J. for Light and Electron Optics. 2015. Vol. 126. Issues 11–12. P. 1081–1089.

11. Сидоров Н. В., Волк Т. Р., Маврин Б. Н., Калинин В. Т. Ниобат лития: дефекты, фоторефракция, колебательный спектр, поларитоны. М.: Наука, 2003. 255 с.

12. Кузьминов Ю. С. Электрооптический и нелинейно-оптический кристалл ниобата лития. М.: Наука, 1987. 262 с.

13. Abrahams S. C. Properties of Lithium Niobate. New York, 1989. 234 p.

14. Abrahams S. C., Reddy J. M., Bernstein J. L. Ferroelectric Lithium Niobate. Single Crystal X-Ray Diffraction study at 24°C // J. Phys. Chem. Sol. 1966. Vol. 27, № 6/7. P. 997–1012.

15. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Калинин В. Т. Влияние вторичной структуры на оптические свойства сегнетоэлектрических кристаллов ниобата лития с низким эффектом фоторефракции // Тр. КНЦ РАН. Химия и материаловедение. Апатиты, 2015. № 31. С. 464–468.

16. Abdi F., Aillerie M., Fontana M., Bourson P., Volk T., Maximov B., Sulyanov S., Rubinina N., Wöhlecke M. Influence of Zn doping on electrooptical properties and structure parameters of lithiumniobate crystals // Appl. Phys. B. 1999. № 68. P. 795–799.

17. Блистанов А. А., Любченко В. М., Горюнова А. Н. Рекомбинационные процессы в кристаллах  $\text{LiNbO}_3$  // Кристаллография. 1998. Т. 43, №1. С. 86–91.

18. Сидоров Н. В., Яничев А. А., Палатников М. Н., Габаин А. А., Пикуль О. Ю. Оптическая однородность, дефекты и фоторефрактивные свойства стехиометрического,

конгруэнтного и легированных цинком кристаллов ниобата лития // Опт. и спектр. 2014. Т. 117, № 1. С. 76–85.

19. Макарова О. В., Палатников М. Н., Бирюкова И. В., Теплякова Н. А., Сидоров Н. В. Особенности структуры и свойства монокристаллов  $\text{LiNbO}_3$ , легированного бором // Неорг. матер. 2018. Т. 54, № 1. С. 53–58.

20. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Яничев А. А., Титов Р. А., Теплякова Н. А. Структурный беспорядок и оптические свойства конгруэнтных кристаллов ниобата лития, легированных цинком и бором // Опт. и спектр. 2016. Т. 121, № 1. С. 40–49.

21. Сидоров Н. В., Палатников М. Н., Яничев А. А., Титов Р. А., Теплякова Н. А. Структурный беспорядок кристаллов  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  и его проявление в спектре комбинационного рассеяния света // ЖПС. 2016. Т. 83, № 5. С. 707–714.

22. Палатников М. Н., Бирюкова И. В., Макарова О. В., Ефремов В. В., Кравченко О. Э., Калинин В. Т. Получение и свойства кристаллов ниобата лития, выращенных из расплавов конгруэнтного состава, легированных бором // Тр. КНЦ РАН. Химия и материаловедение. Апатиты, 2015. № 31. С. 434–438.

23. Палатников М. Н., Сидоров Н. В., Бирюкова И. В., Щербина О. Б., Калинин В. Т. Гранулированная шихта для выращивания монокристаллов ниобата лития // Персп. матер. 2011. № 2. С. 93–97.

24. Пикуль О. Ю., Сидоров Н. В. Лазерная коноскопия кристаллов. Апатиты: Изд-во КНЦ РАН, 2014. 160 с.

25. Sidorov N. V., Serebryakov Yu. A. The structural ordering and photorefraction in lithium niobate admixed crystals // Ferroelectrics. 1994. V. 160. P. 191–205.

26. Sidorov N. V., Palatnikov M. N., Teplyakova N. A., Yanichev A. A., Titov R. A. Structure disorder and photorefractive properties of  $\text{LiNbO}_3:\text{B}$  crystals // Proc. SPIE Asia-

Pacific Conference on Fundamental Problems of Opto- and Microelectronics. 2016. Vol. 10176. doi:10.1117/12.2268155.

27. Сидоров Н. В., Маврин Б. Н., Чуфырев П. Г., Палатников М. Н. Фононные спектры монокристаллов ниобата лития / Под ред. В. Т. Калиникова. Апатиты: Изд-во КНЦ РАН, 2012. 215 с.

28. Крук А. А., Сидоров Н. В., Яничев А. А., Палатников М. Н. Влияние длины волны

возбуждения на спектры кристаллов ниобата лития, легированных медью // ЖПС. 2014. Т. 81, № 1. С. 5–10.

29. Витинг Л. М. Высокотемпературные растворы-расплавы. М.: Изд-во МГУ, 1991. 221 с.

30. Леонюк Н. И. Выращивание новых оптических кристаллов из борсодержащих растворов-расплавов // Кристаллогр. 2008. Т. 53, № 3. С. 546–554.

31. Палатников М. Н. Материалы электронной техники на основе сегнетоэлектрических монокристаллов и керамических твердых растворов ниобатов-танталатов щелочных металлов с микро- и наноструктурами: Дис. д-ра техн. наук. Апатиты, 2010. 488 с.

Материал поступил в редколлегию 20.03.2018

**N. V. Sidorov, N. A. Teplyakova, R. A. Titov, M. N. Palatnikov**

*Tananaev Institute of Chemistry and Technology  
of the Federal Research Centre «Kola Science Centre of the Russian Academy of Sciences»  
26 a, Akademgorodok, Apatity, Murmansk Region, 184209, Russian Federation*

*sidorov@chemy.kolasc.net.ru*

### **STRUCTURE DISORDER AND OPTICAL CHARACTERISTICS OF CONGRUENT LITHIUM NIOBATE CRYSTALS GROWN FROM BORON DOPED MELTS**

We have detected changes in the order of main cations and vacancies along the crystal polar axis and distortions of oxygen octahedra in lithium niobate crystals grown from congruent melt doped by non-metal boron. This was found due to concentration dependence of widths and intensities of Raman bands of the researched crystals. Boron was found to be absent from the crystal structure. The distortions of oxygen octahedra were demonstrated to be anisotropic. The distortion is connected with octahedra expansion along the polar axis. Nominally pure lithium niobate crystals grown from boron doped congruent melt are structurally uniform. The structure uniformity of such crystals is higher than the one of nominally pure congruent crystals. NbLi defects amount in such crystals is close to the amount in stoichiometric crystal. At the same time lithium niobate crystals grown from boron doped congruent melt possesses weaker photorefractive effect than the stoichiometric crystal.

*Keywords:* lithium niobate, melt, doping, photorefractive effect, Raman scattering, photoinduced light scattering, laser conoscopy.

*For citation:*

Sidorov N. V., Teplyakova N. A., Titov R. A., Palatnikov M. N. Structure Disorder and Optical Characteristics of Congruent Lithium Niobate Crystals Grown from Boron Doped Melts. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 70–79. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-70-79

**М. Н. Аликулов**

*Каршинский инженерно-экономический институт  
проспект Мустакиллик, 225, Карши, Узбекистан*

## **ВЛИЯНИЕ ПРИМЕСНЫХ ЦЕНТРОВ И ПРОЦЕССОВ РЕКОМБИНАЦИИ НА ФОТОЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ ФОТОЭЛЕМЕНТОВ**

Рассматриваются фотоэлектрические явления в солнечных батареях, а также влияние примесных атомов и рекомбинационных процессов на фоточувствительность фотоэлементов. Разъяснена связь скорости рекомбинации в полупроводниках с концентрацией носителей неравновесного заряда, образующейся под воздействием света. Также показана зависимость времени жизни носителей заряда с расположением центров рекомбинации.

*Ключевые слова:* кремний, фотоэлемент, примесь, генерация, рекомбинация, полупроводник, фоточувствительность, солнечная батарея.

В связи с постепенным уменьшением запасов углеводородного сырья в недрах земли чувствуется острая необходимость в поиске альтернативных источников энергии и их эффективном использовании. В качестве альтернативных источников энергии можно выделить энергию воды, солнца, ветра, биомассы, геотермальную энергию и тепловую энергию земли. Среди них наиболее перспективным направлением, несомненно, является использование солнечной энергии.

В последние годы широко ведутся научно-исследовательские работы в этом направлении [1–5]. Результаты проводимых исследований применяются во многих сферах и отраслях экономики республики. Разрабатываются системы обеспечения горячей водой жилых и социальных объектов на основе водонагревательных установок, работающих от солнечной энергии. В целях экономии традиционных видов энергии во многих регионах республики устанавливаются и вводятся в эксплуатацию более ста установок альтернативной энергии в год.

Солнечные батареи отличаются простой конструкции, легкостью установки, безопасностью и долгосрочным использованием. Они характеризуются высокой вы-

ходной мощностью, рабочей и максимальной напряженностью, токами и коэффициентом полезного действия (КПД) при преобразовании световой энергии в электрическую.

Солнечные батареи изготавливаются на основе полупроводниковых материалов. Коэффициент полезного действия фотоэлементов, изготовленных из монокристаллов чистого кремния, очень низкий. Солнечные батареи с высоким КПД изготавливаются на основе монокристаллического кремния путем высокотемпературной диффузии. Высокотемпературная диффузия оказывает отрицательное влияние на основные параметры полупроводниковых материалов. Поэтому при создании приборов на основе полупроводниковых материалов необходимо уделять внимание снижению температуры диффузии.

Принцип работы фотоэлементов, изготовленных из полупроводниковых материалов, основан на физических явлениях, происходящих в результате поглощения полупроводниковыми материалами световой энергии. В полупроводниковых материалах в результате поглощения света образуется пара электрон-дырок, которая участвует в

транспортировке электрического тока. При определенных условиях в результате поглощения световой энергии полупроводником образование носителей дополнительных зарядов может изменить электропроводность кристалла (фоторезистивный эффект), или возможно образование электродвижущей силы (ЭДС) между разными сферами с электронными переходами (фотогальванический эффект).

Основными параметрами фотоэлементов являются:

- интегральная чувствительность  $S_{\text{и}} = f(I_{\Phi}) S$  (не выше 700 мкА/лм);
- фото ЭДС  $E_{\Phi}$  (около 0,6 В);
- частота ограниченной чувствительности  $f_{\text{огр}}$  (ее значение не превышает нескольких сотен Гц);
- КПД кремниевых солнечных батарей (около 13–19 %) [6].

Остановимся на физических явлениях, влияющих на фоточувствительность солнечных батарей.

В настоящее время широко изучена возможность управления электрофизическими свойствами полупроводниковых материалов посредством ввода примесей, образующих глубокий уровень [7–11]. Следует учесть, что некоторые примесные элементы способствуют повышению чувствительности кремния к световой энергии. Авторами работы [12] на основе Si <S> и Si <Rh> созданы структуры, чувствительные к световой энергии. Повышение чувствительности структуры к свету объясняется неравномерным распределением атомов серы и радия в кремнии. Известно, что под влиянием света в полупроводниках образуются неравновесные носители зарядов, что, в свою очередь, является причиной изменения фотопроводимости:

$$\begin{aligned}\sigma_0 &= e\mu_n n_0 + e\mu_p p_0, \\ \sigma_{\text{свет}} &= e\mu_n n + e\mu_p p, \\ \Delta\sigma &= \sigma_{\text{свет}} - \sigma_0 = e\mu_n \Delta n + e\mu_p \Delta p, \\ n &= n_0 + \Delta n, \quad p = p_0 + \Delta p.\end{aligned}$$

Здесь  $\mu_n$  и  $\mu_p$  – подвижность электронов и дырок соответственно,  $n$  и  $p$  – концентрация электронов и дырок.

Изменение концентрации электронов ( $\Delta n$ ) и дырок ( $\Delta p$ ) в примесных полупроводниках объясняется следующим образом.

Атомы примесей образуют в кремнии уровни акцепторного и донорного свойства. Атомы примесей могут быть в нейтральном или ионном виде. Если атомы примесей нейтральны, под влиянием света они ионизируются. Если падающая световая энергия будет удовлетворять условию  $\hbar\omega > E_d$ , то наблюдается переход электронов с донорского уровня  $E_d$  на уровень проводимости  $E_c$ . Также при падающей световой энергии  $\hbar\omega \geq E_A$  наблюдается переход электронов с зоны валентности  $E_v$  на акцепторный уровень  $E_A$ . В результате увеличивается концентрация электронов ( $\Delta n$ ) и дырок ( $\Delta p$ ), что, в свою очередь, приводит к повышению проводимости. Если атомы примесей будут ионизированы из валентной зоны на донорский уровень, наблюдается переход электронов с акцепторного уровня в зону проводимости, что также является причиной повышения концентрации электронов  $\Delta n$  и дырок  $\Delta p$ . Для этого достаточна следующая энергия световых квантов:

$$\begin{aligned}\hbar\omega &\geq E_g - \Delta E_d, \\ \hbar\omega &\geq E_g - \Delta E_A.\end{aligned}$$

Фоточувствительность солнечных батарей, изготовленных на основе полупроводников, связана также со скоростью рекомбинации. В свою очередь, скорость рекомбинации связана с концентрацией неравновесных электронов и дырок. В процессе рекомбинации различаются следующие ее виды, связанные с выделением энергии по отношению к начальному и конечному состояниям электрона:

- рекомбинация «зона-зона»;
- рекомбинация через местные центры;
- поверхностная рекомбинация.

При рекомбинации «зона-зона» электрон непосредственно переходит из зоны проводимости в зону валентности. Под влиянием света из зоны валентности электрон переходит в зону проводимости. В процессе рекомбинации электрон за счет выделения полученной энергии переходит из зоны проводимости в зону валентности (рис. 1).

Количество электронов в зоне проводимости с энергией от  $E^1$  до  $E^1 + dE^1$  выражается в виде  $N_c(E)f(E^1)dE^1$ . Для валентной зоны это выражение имеет вид

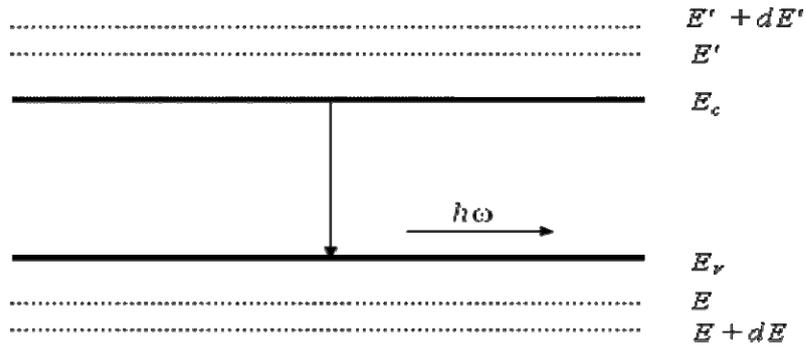


Рис. 1. Процесс рекомбинации «зона-зона»

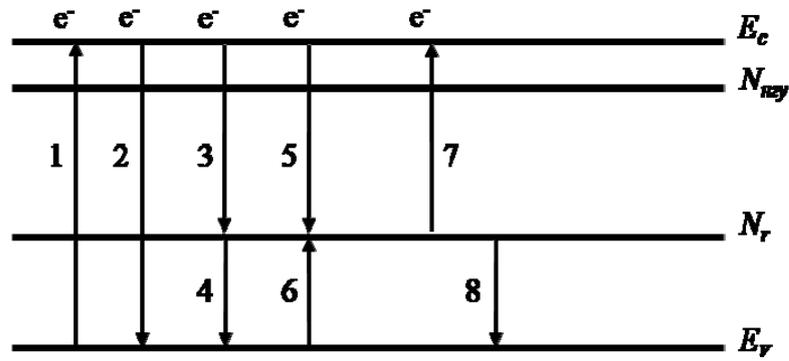


Рис. 2. Генерация и возможные рекомбинационные переходы в кремнии через местные центры

$N_V(E)f(E)dE$ . Чем больше в зоне проводимости электронов, а в зоне валентности дырок, тем больше будет число рекомбинаций, которое выражается в следующем виде:

$$dr = W(E^1, E)N_C(E)N_V(E)f(E^1)f(E)dEdE^1. \quad (1)$$

Функция Ферми неравновесных носителей зарядов, образующихся в полупроводниках под внешним влиянием, имеет вид

$$f(E^1) = \left[ \exp\left(\frac{F_n - E^1}{kT}\right) + 1 \right]^{-1},$$

$$f(E) = \left[ \exp\left(\frac{E - F_p}{kT}\right) + 1 \right]^{-1},$$

$$n = n + \Delta n = N_C \exp\left(\frac{F_n - E_c}{kT}\right),$$

$$p = p_0 + \Delta p = N_V \exp\left(\frac{E_v - F_p}{kT}\right),$$

$$\begin{aligned} np &= n_0 p_0 \exp\left(\frac{F_n - F_p}{kT}\right) = \\ &= n_i^2 \exp\left(\frac{F_n - F_p}{kT}\right). \end{aligned}$$

Тогда

$$f(E^1)f(E) = \frac{n \cdot p}{N_V \cdot N_C} e^{-\frac{E^1 - E_c}{kT}} e^{-\frac{E_v - E}{kT}},$$

и при интегрировании уравнения (1) получается

$$\begin{aligned} r &= \int dr = \\ &= \iint W(E, E^1)N_C(E^1)N_V(E)f(E^1)f(E)dEdE^1. \end{aligned}$$

Это выражение дает полную рекомбинацию

$$r_n = \gamma np, \quad (2)$$

где  $\gamma$  – коэффициент рекомбинации:

$$\gamma = \frac{1}{N_c N_v} \int_{E^1=E_c}^{+\infty} \int_{E=-\infty}^{E_v} W(E, E^1) N_c(E^1) N_v(E) \times \\ \times e^{-\frac{E^1-E_c}{kT}} e^{-\frac{E_v-E}{kT}} dE dE^1, \\ r_0 = \gamma_r n_0 p_0. \quad (3)$$

Равенство (3) выражает рекомбинацию в темноте при отсутствии внешнего влияния. Скорость рекомбинации образуется при вычитании равенства (3) из равенства (2) только при воздействии внешнего влияния:

$$r_{\text{свет}} = r_n - r_0 = \\ = \gamma_r [(n_0 + \Delta n)(p_0 + \Delta p) - n_0 p_0] = \\ = \gamma_r [n_0 p_0 + n_0 \Delta p + p_0 \Delta n + \Delta n \Delta p - n_0 p_0] = \\ = \gamma_r (\Delta n p_0 + \Delta p n_0 + \Delta n \Delta p).$$

Значит, возникающая под влиянием света скорость рекомбинации связана с концентрацией неравновесных носителей зарядов. Для уменьшения объемной скорости рекомбинации в полупроводниковых материалах необходимо снизить чувствительность к облучению или защитить их от него. В рекомбинациях, возникающих через центры рекомбинации, роль этих центров в запрещенной зоне полупроводников играют энергетические уровни, образуемые атомами примесей. При введении в состав полупроводниковых материалов примесей (Au, Ni, Co, Pt, Ir, Rh, ...), образующих глубокие уровни, изменяется концентрация носителей зарядов, что, в свою очередь, приводит к изменению скорости рекомбинации. Неглубокие уровни ( $N_{\text{глуб}}$ ) не влияют на процесс рекомбинации в кремнии, так как эти центры находятся в полном ионизированном состоянии. На рис. 2 показаны генерация и возможные рекомбинационные переходы в кремнии через местные центры ( $N_r$ ). Переходы 1, 7 и 8 означают процессы генерации, при этом электроны из зоны валентности или через энергетические уровни, образованные примесными атомами, переходят в зону проводимости. Переходы 2, 3 и 6 обозначают процесс рекомбинации, при этом посредством выделения собственной энергии электроны переходят в зону валентно-

сти или из зоны проводимости переходят на энергетические уровни, образованные примесными атомами. Скорости рекомбинаций, образованных через 2-, 3- и 6-переходы, выражаются следующим образом:

$$r_2 = \gamma_n p e^{\frac{\Delta n}{\tau_n}}, \\ r_3 = \gamma_n n (N_r - n_r), \\ r_6 = \gamma_p p n_r,$$

где  $n_r$  – концентрация электронов в центре рекомбинации,  $\gamma_n$  и  $\gamma_p$  – коэффициенты рекомбинации для электронов и дырок.

Скорости генераций, происходящих через 7- и 8-переходы, выражаются следующим образом:

$$g_7 = \alpha_n n_r, \\ g_8 = \alpha_p (N_r - n_r).$$

Изменение концентрации электронов, находящихся в зоне проводимости, происходит в контакте с процессами рекомбинации и генерации

$$\frac{d\Delta n}{dt} = g - \gamma_n n (N_r - n_r) + \gamma_n n_r n_1, \quad (4)$$

$$\frac{d\Delta p}{dt} = g - \gamma_p n_r p + \gamma_p (N_r - n_r) p_1. \quad (5)$$

Для решения уравнений (4) и (5) воспользуемся условием электронейтральности

$$\Delta p = \Delta n + \Delta n_r$$

и условием стационарности

$$\frac{d\Delta n}{dt} = \frac{d\Delta p}{dt} = 0.$$

Тогда

$$\Delta n_r = \frac{(\gamma_p p_1 + \gamma_n n) N_r}{\gamma_p (p_1 + p) + \gamma_n (n_1 + n)}. \quad (6)$$

При совместном решении уравнений (4), (5) и (6) образуется выражение, характеризующее скорость рекомбинации

$$r = \frac{\Delta n}{\tau_n} = \frac{\Delta p}{\tau_p} = N_r \frac{\gamma_n \gamma_p (np - n_i^2)}{(n_1 + n) \gamma_n \pm \gamma_p (p + p_1)}, \quad (7)$$

$$\tau = \tau_{po} \frac{n_o + \Delta n + n_1}{p_o + n_o + \Delta n} + \tau_{no} \frac{p_o + p_1 + \Delta p}{p_o + n_o + \Delta n}.$$

Время жизни носителей заряда зависит от местоположения центров рекомбинации. Например, для полупроводников  $n$ -типа при  $E_r < F < E_c$  будут иметь место соотношения  $n_o \gg p_o$ ,  $n_o > n_1$ ,  $p_1 \gg p_o$ , и в данном случае  $\tau \approx \tau_{po}$ . Если же  $E_i = \frac{E_g}{2} < F < E_r$ , то имеют место соотношения  $n_o \gg p_o$ ,  $n_1 \gg n_o$ ,  $p_1 \gg p_o$ ,  $n_1 \gg p_1$  и в этом случае

$$\tau = \frac{n_1}{n_o} \tau_{po} = \tau_{po} e^{-\frac{E_r - F}{kT}}. \quad (8)$$

Следовательно, при введении примесей в полупроводники наблюдается увеличение или снижение фоточувствительности. Это связано со свойствами энергетических уровней, которые образуются примесными атомами в кремнии. Во-вторых, из выражения (7) видно, что фоточувствительность полупроводниковых фотоэлементов связана со скоростью рекомбинации, что, в свою очередь, зависит от концентрации и времени жизни носителей неравновесных зарядов.

Во многих случаях поверхностная рекомбинация играет решающую роль в полупроводниковых приборах. На поверхности полупроводника и в сферах контакта полупроводника с другими материалами в большом количестве образуются центры рекомбинации. Поверхностная рекомбинация связана с технологическими процессами.

Из выражения (8) видно, что время жизни зарядов увеличивается экспоненциально. Это, в свою очередь, свидетельствует об отсутствии необходимости выполнения дорогостоящей операции высокотемпературной диффузии.

### Список литературы

1. Современные проблемы полупроводниковой фотоэнергетики: Пер. с англ. / Под ред. Т. Коутса, Дж. Микина. М.: Мир, 1988.
2. Ольховский Г. Г. Глобальные проблемы энергетики // Электрические станции. 2005. № 1. С. 4–10.

3. Гуламова М. А., Потаенко К. Д., Турсунов М. Н. и др. Солнечные элементы из отходов монокремния серийного производства // Гелиотехника. 1990. № 4.

4. Афанасьев В. П., Теруков Е. И., Шерченков А. А. Тонкопленочные солнечные элементы на основе кремния. 2-е изд. СПб.: Изд-во СПбГЭТУ «ЛЭТИ», 2011.

5. Кашкаров А. П. Ветрогенераторы, солнечные батареи и другие полезные конструкции. М.: ДМК Пресс, 2011.

6. Каримов Б. Х. Учебник по дисциплине «Электроника и микроэлектроника». Фергана, 2011.

7. Юнусов М. С. Физические явления в кремнии, легированном элементами платиновой группы. Ташкент: Фан, 1983, 80 с.

8. Юнусов М. С. Природа глубоких примесных центров, создаваемых атомами группы платины в кремнии // Глубокие уровни в полупроводниках / Под ред. В. И. Фистулы. Ташкент: ТашГУ, 1981. С. 45–51.

9. Азимов С. А., Юнусов М. С., Турсунов Н. А., Султонов Н. А. Некоторые свойства кремния с примесью палладия // ФТП. 1972. Т. 6, вып. 8. С. 1438.

10. Азимов С. А., Умаров Б. В., Юнусов М. С. Исследование диффузии и растворимости иридия в кремнии // ФТП. 1976. Т. 10, вып. 7. С. 1418.

11. Юнусов М. С., Турсунов Н. А. Электрофизические свойства кремния с примесью рутения // ФТП. 1974. Т. 8, вып. 6. С. 1145.

12. Юнусов М. С., Каримов М., Кочкаров Р. Х. Влияние радиации на параметры фоточувствительных структур на основе Si <S>, Si <Rh> // Актуальные проблемы полупроводниковых структурных элементов: Тез. докл. республиканской науч. конф. Фергана, 1992. С. 34.

Материал поступил в редколлегию 15.03.2018

**M. N. Alikulov**

*Karshi Engineering-Economics Institute  
225 Mustakillik Ave., Karshi, Uzbekistan*

**INFLUENCE OF IMPURITY CENTERS AND RECOMBINATION PROCESSES  
ON PHOTOELECTRICITY OF PHOTOELEMENTS**

The article deals with photoelectric phenomena in solar batteries, as well as the influence of impurity atoms and recombination processes on the photosensitivity of photocells. Explained the relationship between the rate of recombination in semiconductors and the concentration of carriers of a non-equilibrium charge formed under the influence of light. The dependence of the lifetime of charge carriers on the location of recombination centers is also shown.

*Keywords:* silicon, photocell, impurity, generation, recombination, semiconductor, photosensitivity, solar battery.

*For citation:*

Alikulov M. N. Influence of Impurity Centers and Recombination Processes on Photoelectricity of Photoelements. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 80–85. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-80-85

УДК 539.199; 51-72  
DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-86-94

**Н. Ю. Кручинин, М. Г. Кучеренко**

*Центр лазерной и информационной биофизики  
Оренбургского государственного университета  
пр. Победы, 13, Оренбург, 460018, Россия*

*kruchinin\_56@mail.ru, rphys@mail.osu.ru*

### **МОЛЕКУЛЯРНО-ДИНАМИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ КОНФОРМАЦИОННОЙ СТРУКТУРЫ ПОЛИАМФОЛИТОВ НА ПОВЕРХНОСТИ ЗОЛОТОЙ НАНОЧАСТИЦЫ**

Методом молекулярной динамики исследовался характер расположения полиамфолитов на поверхности сферической золотой наночастицы, в том числе с адсорбированными на макроцепи молекулами эозина. В результате проведенного молекулярно-динамического моделирования были получены равновесные конформационные структуры полиамфолитных полипептидов, адсорбированных на поверхности сферической золотой наночастицы. Приведено описание радиального распределения плотности звеньев макромолекулы, адсорбированной на поверхности сферической наночастицы на основе специальной математической модели конформационной структуры полимера, созданной с использованием статистической теории макромолекул. Построены зависимости средней радиальной концентрации атомов полиамфолитных полипептидов с дифференциацией по типам звеньев, а также адсорбированных на макроцепи молекул эозина на золотой наночастице. Проведены аппроксимирующие кривые, рассчитанные на основе статистической теории макромолекул. Полученные результаты могут быть использованы для создания наносистем с заданным характером расположения молекул красителей, что может найти применение при создании люминесцентно-оптического измерителя концентрации молекулярного (в том числе синглетного) кислорода.

*Ключевые слова:* молекулярная динамика, полиамфолиты, золотая наночастица, органические красители, полипептиды.

#### **Введение**

Наночастицы и нанотрубки, связанные с молекулами-метками, а также покрытые полимерными цепями, находят широкое применение в различных областях науки и техники как для биомедицинских целей, так и при создании разнообразных сенсоров и функциональных наносистем [1–5]. Одними из перспективных наносистем являются такие системы, в которых на золотой наночастице адсорбирована макромолекула полипептида с молекулами органических красителей.

Данные наносистемы могут найти широкое применение, в частности, при создании люминесцентно-оптического измерителя

концентрации молекулярного (в том числе синглетного) кислорода, а также в качестве сенсibilизаторов генерации синглетного кислорода в фотодинамической терапии [6–9]. В люминесцентно-оптическом измерителе концентрации молекулярного и синглетного кислорода в качестве элемента используется наносистема, в которой макромолекула адсорбирована на поверхности наночастицы или в нанопоре и при этом содержит в своей структуре фотоактивные центры (молекулы красителей) [6–9]. Неоднородное размещение молекул красителей оказывает существенное влияние на кинетику двустадийных фотореакций с участием электронно-возбужденных молекул красителей и кислорода, которые могут протекать

*Кручинин Н. Ю., Кучеренко М. Г. Молекулярно-динамическое моделирование конформационной структуры полиамфолитов на поверхности золотой наночастицы // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 2. С. 86–94.*

в слое из звеньев макромолекулы. При лазерной активации системы часть молекул красителей переходит в возбужденное триплетное состояние. В приповерхностном слое относительно свободно диффундирует молекулярный кислород. На первой стадии происходит тушение молекул в триплетном состоянии возбужденным кислородом. В результате возникают электронно-возбужденные синглетные состояния молекул кислорода, при этом часть из них может вступать в реакцию с молекулами красителей в триплетном состоянии, избежавшими тушения на первой стадии. В результате на второй стадии молекулы красителя переходят из триплетного состояния в первое возбужденное синглетное состояние, поэтому эта стадия сопровождается замедленной флуоресценцией. Важно знать распределение концентрации молекул красителей, так как это будет оказывать существенное влияние на протекание двустадийных реакций в такой наносистеме, и от этого будет зависеть форма импульсного сигнала замедленной флуоресценции.

В данной работе методом молекулярной динамики исследовался характер расположения полиамфолитных полипептидов на поверхности золотой наночастицы, в том числе с молекулами эозина. Выбор полиамфолитных макромолекул был обусловлен возможностью использования макроцепей с упорядоченным расположением заряженных звеньев, которые будут служить центрами адсорбции молекул красителей, находящихся в растворе в ионной форме [10].

### Распределение звеньев идеальной макромолекулы на поверхности сферической наночастицы

Радиальное распределение концентрации атомов полипептида, адсорбированного на поверхности сферической наночастицы, аппроксимируется аналитическими зависимостями, полученными для идеальной макромолекулы методами статистической теории макромолекул [9].

Согласно статистической теории распределения плотности звеньев полимерной цепи на поверхностях адсорбентов [11], плотность звеньев макроцепи  $n(\mathbf{r})$  определяется функцией  $\psi(\mathbf{r})$ :

$$n(\mathbf{r}) = \text{const } \psi^2(\mathbf{r}). \quad (1)$$

Ранее была определена радиальная зависимость концентрации звеньев на поверхности сферической наночастицы с  $\delta$ -функциональной ямой, моделирующей притяжение звеньев полимерной молекулы к поверхности наночастицы [9]:

$$\begin{cases} \psi_I = A \frac{e^{-qr} (e^{2qr} - e^{2qR})}{2qr}, & R < r < r_0 \\ \psi_{II} = A \frac{e^{-qr} (e^{2qr_0} - e^{2qR})}{2qr} & r_0 < r < \infty \end{cases}, \quad (2)$$

где  $q$  – решение трансцендентного уравнения, содержащего параметры потенциала поверхности наночастицы и температуру:

$$q = \frac{3\alpha}{a^2 k_B T} (1 - e^{2q(R-r_0)}). \quad (3)$$

где  $a$  – размер мономера,  $\alpha$  – глубина потенциальной ямы.

### Молекулярно-динамическое моделирование

Молекулярно-динамическое (МД) моделирование было произведено с использованием программного комплекса NAMD 2.12 [12] для следующих молекулярных систем:

1) полипептид на поверхности золотой наночастицы;

2) полипептид с 10 молекулами эозина на поверхности золотой наночастицы.

Было рассмотрено три варианта полипептидов из 100 аминокислотных остатков:

1) полипептид A90R5D5, состоящий из 90 аминокислотных остатков ALA (A, нейтральный) с равномерно распределенными 5 звеньями ASP (D, заряд  $-1e$ ) и 5 звеньями ARG (R, заряд  $+1e$ ) – AAAADAAAAAAAAA AAAAAAAAAAADAADAAAAAAAAA AAAAAAAAAAADAADAAAAAAAAA DAAAAAAAAAADAADAAAAAAAAA AAAARAAAAA;

2) полипептид A80R10D10, состоящий из 80 звеньев ALA с равномерно распределенными 10 звеньями ASP и 10 звеньями ARG – AADAAARAAAADAAARAAAADAAA ARAAADAAARAAAADAAARAAA

DAAAARAAAADAAAARAAAADAAAAR  
AAAADAA-AARAAAADAAAARAA;

3) полипептид A60R20D20, состоящий из 60 звеньев ALA с равномерно распределенными 10 парами (20 звеньев) ASP и 10 парами (20 звеньев) ARG – AADDAAARRAA ADDAAARRAAADDDAAARRAAADDDAAA RRAAADDDAAARRAAADDDAAARRAAADD AAARRAAADDDAAARRAAADDDAAARRAA ADDAAARRA.

Модель золотой наночастицы была получена путем вырезания шара радиусом 4 нм из кристалла золота (гранецентрированная кубическая решетка), аналогичного используемому в [13]. В стартовой конфигурации полипептид располагался на небольшом расстоянии от поверхности золотой наночастицы. Макромолекула была предварительно свернута в неравновесную клубковую структуру – три разных стартовых клубка для каждого полипептида. Молекулы красителей в начальный момент времени размещались около полипептида. Вся молекулярная система была помещена в куб со стороной 24 нм, заполненный водой. Перед началом МД-моделирования производилась геометрическая оптимизация молекулярной системы методом сопряженных градиентов в течение 5000 шагов.

МД-моделирование производилось при постоянной температуре 300 К с шагом по времени 0,001 пс в воде в течение 15 нс. Данного времени было достаточно для получения равновесных конформаций полипептидов. Для контроля получения равновесных конформаций осуществлялось наблюдение за изменением среднеквадратичного расстояния полипептида (RMSD). Как правило, равновесие устанавливалось через 8–12 нс от начала моделирования. Атомы наночастицы фиксировались. Для поддержания температуры использовался термостат Берендсена. Использовалось силовое поле CHARMM22 [14] для полипептидов, модель воды TIP3P [15]. Взаимодействие с золотой наночастицей описывалось потенциалом Леннард-Джонса (потенциал 6–12) [13; 16], разработанным в [17]. Перераспределение зарядов на поверхности наночастицы под воздействием аминокислотных остатков и молекул красителей не учитывалось, атомы наночастицы задавались нейтральными, как и в работах других авторов, например в [13]. Для эозина (заряд  $(-2e)$ ) использовалось силовое поле

CHARMM General Force Field (CGenFF) [18; 19]. Потенциал Ван-дер-Ваальса обрезался на расстоянии 1,2 нм с помощью функции сглаживания между 1,0 и 1,2 нм. Электростатические взаимодействия рассчитываются непосредственно на расстоянии 1,2 нм, для более дальних дистанций использовался метод частица-сетка Эвальда (PME) [20] с шагом сетки 0,11 нм.

По полученным конечным конформациям рассчитывались радиальные распределения концентрации атомов полипептида и красителей на поверхности наночастицы:

$$n(r) = \frac{dN(r, r + dr)}{2\pi r^2 \cdot dr}, \quad (4)$$

где  $dN(r, r + dr)$  – количество атомов на расстоянии  $r$  от центра наночастицы в слое  $dr$ . После этого проводилась аппроксимация полученной радиальной концентрации (4) формулами (1)–(3).

#### Результаты исследования МД-моделирование полиамфолитных полипептидов на поверхности золотой наночастицы

Было произведено МД-моделирование для каждого полипептида из трех разных стартовых клубков на поверхности золотой наночастицы без молекул красителей. Во всех случаях происходила адсорбция полипептидов. На рис. 1 изображены некоторые результаты МД-моделирования полипептидов A80R10D10, A90R5D5 и A60R20D20 на поверхности золотой наночастицы через 15 нс при температуре 300 К.

Были получены средние радиальные распределения концентрации атомов полипептида с дифференциацией по типам звеньев (рис. 2). Согласно формулам (1)–(3) были построены аппроксимирующие кривые к распределениям средней радиальной концентрации атомов полипептида без различия по типам звеньев. Параметры аппроксимирующей кривой для полипептида A80R10D10 (рис. 2, а):  $r_0 = 4,3$  нм,  $R = 4$  нм,  $a = 0,5$  нм,  $q = 1,61$  нм<sup>-1</sup>,  $\alpha = 0,0056$  эВ·нм. Как видно из рис. 2, а, радиальная зависимость концентрации атомов полипептида A80R10D10 хорошо аппроксимируется формулами (1)–(3), а радиальные зависимости концентрации атомов по типам звеньев



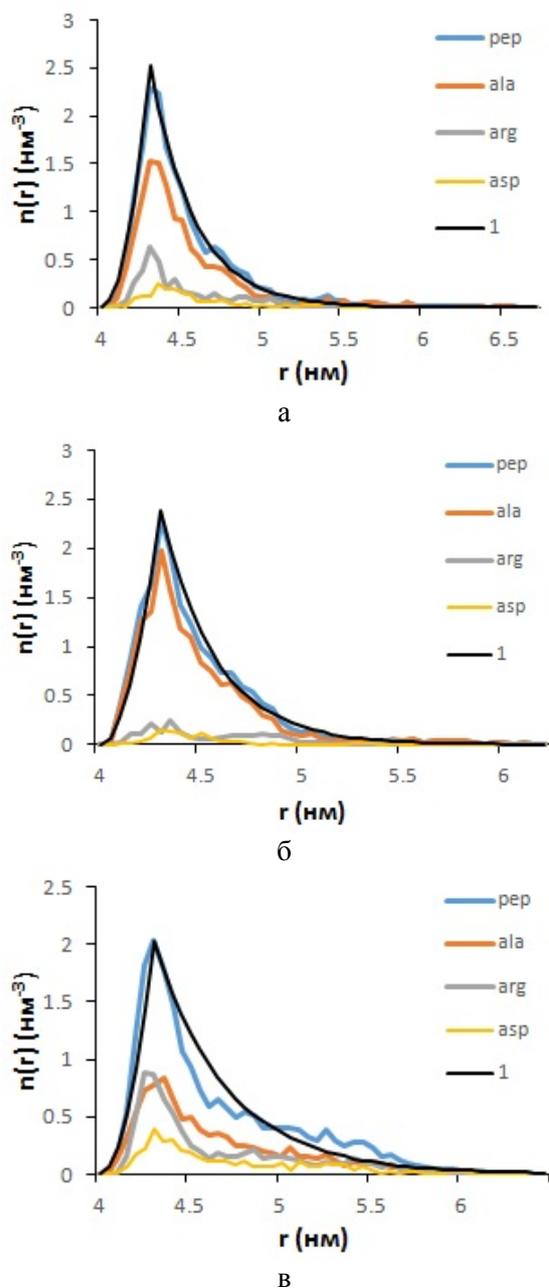


Рис. 2. Средняя радиальная зависимость концентрации атомов полипептида A80R10D10 (а), A90R5D5 (б) и A60R20D20 (в) на поверхности золотой наночастицы с дифференциацией по типам звеньев: pep – средняя радиальная зависимость концентрации атомов по всем атомам полипептида; ala, arg и asp – средние радиальные зависимости концентрации атомов по типам аминокислотных остатков; цифрой 1 обозначена аппроксимирующая кривая, построенная по формулам (1)–(3)

в целом повторяют профиль радиальной концентрации полипептида. При этом пик радиального распределения концентрации атомов аминокислотных остатков ARG вы-

ше, чем для того же количества остатков ASP. Это связано с тем, что остатки ARG состоят из вдвое большего количества атомов, чем остатки ASP (24 атома у ARG и 12 у ASP).

Изображены средние радиальные распределения концентрации атомов полипептида A90R5D5 (рис. 2, б) и A60R20D20 (рис. 2, в) с дифференциацией по типам звеньев. Параметры аппроксимирующей кривой (1)–(3) к распределению средней радиальной концентрации атомов полипептида A90R5D5 без различия по типам звеньев получились равными параметрам, полученным для полипептида A80R10D10:  $r_0 = 4,3$  нм,  $R = 4$  нм,  $a = 0,5$  нм,  $q = 1,61$  нм<sup>-1</sup>,  $\alpha = 0,0056$  эВ·нм. Параметры аппроксимирующей кривой (1)–(3) к распределению средней радиальной концентрации атомов полипептида A60R20D20 без различия по типам звеньев:  $r_0 = 4,3$  нм,  $R = 4$  нм,  $a = 0,5$  нм,  $q = 1,02$  нм<sup>-1</sup>,  $\alpha = 0,0048$  эВ·нм. Отличия в параметрах полипептида A60R20D20 от A80R10D10 и A90R5D5 связаны с увеличившейся долей заряженных звеньев ARG и ASP в цепи из нейтральных звеньев ALA.

#### МД-моделирование полиамфолитных полипептидов с молекулами эозина на поверхности золотой наночастицы

Было проведено МД-моделирование полипептидов A60R20D20 и A80R10D10 с 10 молекулами эозина на поверхности золотой наночастицы из трех разных стартовых клубковых конфигураций макроцепи. На рис. 3 изображены результаты некоторых вариантов МД-моделирования полипептидов A60R20D20 и A80R10D10 с молекулами эозина на поверхности золотой наночастицы. Видно, что молекулы эозина адсорбируются на макроцепи преимущественно в местах расположения положительно заряженных звеньев ARG. При МД-моделировании полипептида A60R20D20 почти все молекулы эозина оставались адсорбированными на макроцепи (рис. 3, а), а при расчетах с A80R10D10 часть красителей десорбировалась с макромолекулы (рис. 3, б). Это связано с тем, что у A60R20D20 положительные звенья ARG, являющиеся центрами адсорбции, расположены попарно, а у A80R10D10 они расположены по отдель-

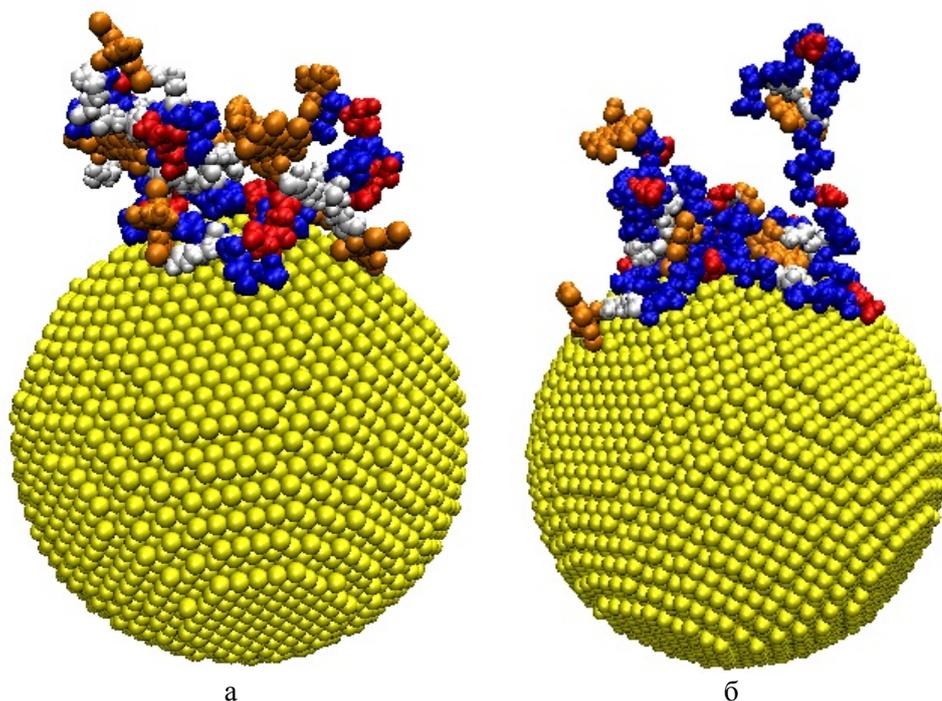


Рис. 3. Полипептиды A60R20D20 (а) и A80R10D10 (б) с адсорбированными молекулами эозина (выделены оранжевым цветом) на поверхности золотой наночастицы после МД-моделирования (синий цветом изображены звенья ALA, белым – ARG, красным – ASP)

сти и их в два раза меньше. Из рис. 3 также видно, что наличие отрицательно заряженных молекул эозина ( $-2e$ ) оказывает существенное влияние на конформационную структуру полипептида. Из-за привнесенного отрицательного заряда наблюдается разбухание полипептида на поверхности наночастицы и выбрасывание петель макроцепи в раствор.

Были получены средние радиальные распределения концентрации атомов полипептида с дифференциацией по типам звеньев, а также радиальные распределения концентрации атомов молекул эозина (рис. 4). Параметры аппроксимирующей кривой (1)–(3) к распределению средней радиальной концентрации атомов полипептида A60R20D20 без различия по типам звеньев:  $r_0 = 4,35$  нм,  $R = 4$  нм,  $a = 0,5$  нм,  $q = 0,7$  нм $^{-1}$ ,  $\alpha = 0,0039$  эВ·нм, а к распределению средней радиальной концентрации атомов адсорбированных молекул эозина:  $r_0 = 4,35$  нм,  $R = 4$  нм,  $a = 0,5$  нм,  $q = 0,46$  нм $^{-1}$ ,  $\alpha = 0,0036$  эВ·нм (рис. 4, а). Профиль радиальной зависимости концентрации атомов молекул эозина сходен с профилем ради-

альной концентрации атомов полипептида (см. рис 4, а). Для случаев МД-моделирования полипептида A60R20D20 из других стартовых клубковых конфигураций с молекулами эозина на поверхности золотой наночастицы наблюдается аналогичный характер конформационной структуры макромолекулы и расположения молекул эозина. Если сравнить профили распределений средней радиальной концентрации атомов для случая МД-моделирования полипептида с молекулами эозина (см. рис. 4, а) и без них (см. рис. 2, в), то можно отметить, что значение максимума радиальной концентрации атомов полипептида с молекулами красителей уменьшилось, а ширина профиля распределения увеличилась, что отражают параметры аппроксимирующих кривых.

Параметры аппроксимирующей кривой (1)–(3) к распределению радиальной концентрации атомов полипептида A80R10D10 без различия по типам звеньев:  $r_0 = 4,3$  нм,  $R = 4$  нм,  $a = 0,5$  нм,  $q = 0,94$  нм $^{-1}$ ,  $\alpha = 0,0047$  эВ·нм (рис. 4, б).

При МД-моделировании с A80R10D10 часть красителей десорбировалась с поли-

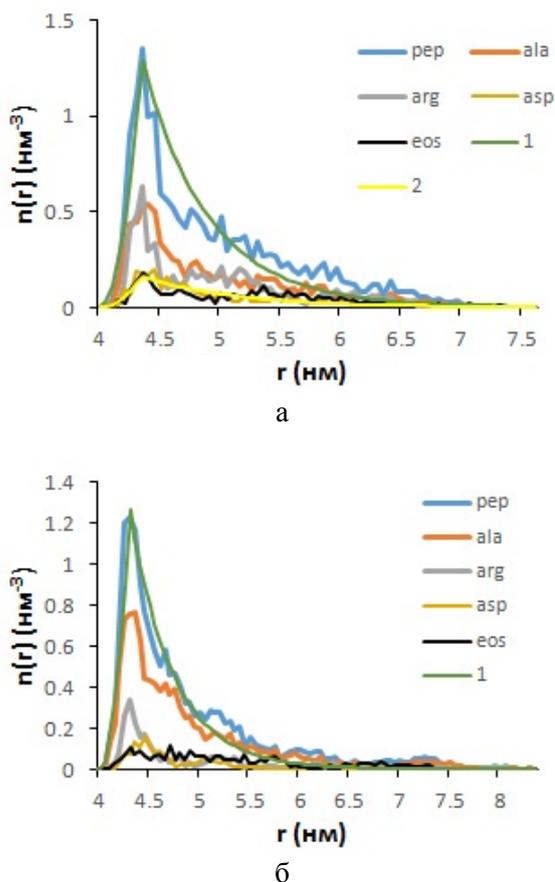


Рис. 4. Средняя радиальная зависимость концентрации атомов полипептида A60R20D20 (а) и A80R10D10 (б) с дифференциацией по типам звеньев и молекул эозина на поверхности золотой наночастицы после МД-моделирования: pep – средняя радиальная зависимость концентрации атомов по всем атомам полипептида; ala, arg и asp – средние радиальные зависимости концентрации атомов по типам аминокислотных остатков; eos – средняя радиальная зависимость концентрации атомов адсорбированных молекул эозина; цифрами 1 и 2 обозначены аппроксимирующие кривые

пептида, поэтому аппроксимирующая кривая к распределению радиальной концентрации атомов молекул эозина не строилась. При сравнении параметров аппроксимирующих кривых к распределениям радиальных концентраций атомов полипептидов A80R10D10 с молекулами эозина (рис. 4, б) и без них (см. рис. 2, а), видно, что они значительно отличаются, а ширина профиля радиального распределения концентрации атомов полипептида при МД-моделировании с красителями увеличилась.

## Заключение

Методом молекулярной динамики была исследована конформационная структура полиамфолитных полипептидов (в том числе с молекулами эозина) на поверхности золотой наночастицы. Построены радиальные распределения концентрации атомов полипептидов с дифференциацией по типам звеньев, а также адсорбированных молекул эозина.

Из результатов МД-моделирования полиамфолитных полипептидов на поверхности золотой наночастицы видно, что распределения средней концентрации атомов полипептида могут аппроксимироваться формулами (1)–(3), полученными методами статистической теории макромолекул. Распределения средней концентрации атомов по отдельным звеньям в целом схожи с концентрацией звеньев всей макроцепи. Различия в значениях концентрации атомов по типам звеньев обусловлены как разным количеством звеньев в макроцепи (ALA по сравнению с ASP и ARG), так и количеством атомов в разных аминокислотных остатках.

При МД-моделировании полиамфолитных полипептидов с молекулами эозина на поверхности золотой наночастицы молекулы красителей (анионы) преимущественно адсорбировались на положительно заряженных звеньях макромолекулы (ARG). Профиль радиального распределения концентрации атомов эозина, адсорбированных на макроцепи, был сходен с профилем радиального распределения концентрации атомов полипептида с попарным распределением заряженных звеньев (A60R20D20). Параметры аппроксимирующих кривых (1)–(3) к радиальному распределению концентрации атомов полипептида A60R20D20 в случаях МД-моделирования с молекулами красителей и без них почти не изменились, однако при расчетах с красителями ширина профиля радиального распределения увеличилась. При МД-моделировании полипептида (A80R10D10) с более низкой линейной концентрацией заряженных звеньев часть молекул эозина десорбировалась с макроцепи, а характер адсорбции и параметры аппроксимирующих кривых (1)–(3) значительно изменились.

Таким образом, проведенное МД-моделирование показывает, что возможно ис-

пользование полиамфолитных полипептидов для создания наносистем с заданным характером расположения молекул красителей, что может найти применение при создании люминесцентно-оптического измерителя концентрации молекулярного (в том числе синглетного) кислорода.

### Список литературы

1. Yan X., Blacklock J., Li J., Möhwald H. One-pot synthesis of polypeptide-gold nanoconjugates for in vitro gene transfection // *ACS Nano*. 2012. Vol. 6. Is. 1. P. 111–117.
2. Stewart M. H., Huston A. L., Scott A. M., Oh E., Algar W. R., Deschamps J. R., Susumu K., Jain V., Prasuhn D. E., Blanco-Cano J., Dawson P. E., Medintz I. L. Competition between Förster Resonance Energy Transfer and Electron Transfer in Stoichiometrically Assembled Semiconductor Quantum Dot-Fullerene Conjugates // *ACS Nano*. 2013. Vol. 7. Is. 10. P. 9489–9505.
3. Yang Y., Burkhard P. Encapsulation of gold nanoparticles into self-assembling protein nanoparticles // *Journal of Nanobiotechnology*. 2012. Vol. 10:42.
4. Wang X., Wang C., Cheng L., Lee S., Liu Z. Noble metal coated single-walled carbon nanotubes for applications in surface enhanced Raman scattering imaging and photothermal therapy // *J Am Chem Soc*. 2012. Vol. 134. Is. 17. P. 7414–7422.
5. Chen Y., Cruz-Chu E. R., Woodard J., Gartia M. R., Schulten K., Liu L. Electrically induced conformational change of peptides on metallic nano-surfaces // *ACS Nano*. 2012. Vol. 6. Is. 10. P. 8847–8856.
6. Кучеренко М. Г., Русинов А. П., Чмерева Т. М., Игнатъев А. А., Кислов Д. А., Кручинин Н. Ю. Кинетика фотореакций в регулярной пористой наноструктуре с цилиндрическими ячейками, заполненными активаторсодержащими макромолекулами // *Оптика и спектроскопия*. 2009. Т. 107, № 3. С. 510–516.
7. Кучеренко М. Г., Чмерева Т. М., Измоденова С. В., Кручинин Н. Ю. Влияние структуры полимерной цепи в кислородсодержащих нанополостях пористых сред на кинетику аннигиляционной замедленной флуоресценции красителей // *Фотоника молекулярных наноструктур: Материалы Междунар. конф. Оренбург, 2009*. С. 26–28.
8. Kucherenko M. G., Izmodenova S. V., Kruchinin N. Yu., Chmerева T. M. Change in the Kinetics of Delayed Annihilation Fluorescence During Rearrangement of Polymer-Chain Structure in a Nanocavity of a Solid Adsorbent // *High Energy Chemistry*. 2009. Vol. 43. № 7. P. 592–598.
9. Кучеренко М. Г., Измоденова С. В., Чмерева Т. М., Кручинин Н. Ю., Подрезова Н. С. Кинетика диффузионно контролируемых фотореакций в приповерхностном слое фуллерен-тубуленовой наночастицы с адсорбированной полимерной цепью // *Вестн. ОГУ*. 2013. № 9. С. 100–109.
10. Кручинин Н. Ю., Кучеренко М. Г. Молекулярно-динамическое моделирование адсорбции полипептидов с фотоактивными молекулами поверхностью углеродной нанотрубки // *Химическая физика и мезоскопия*. 2016. Т. 18, № 2. С. 225–238.
11. Гросберг А. Ю., Хохлов А. П. Статистическая физика макромолекул. М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., 1989. 344 с.
12. Phillips J. C., Braun R., Wang W., Gumbart J., Tajkhorshid E., Villa E., Chipot C., Skeel R. D., Kale L., Schulten K. Scalable molecular dynamics with NAMD // *Journal of Computational Chemistry*. 2005. Vol. 26. Is. 16. P. 1781–1802.
13. Mhashal A. R., Roy S. Effect of Gold Nanoparticle on Structure and Fluidity of Lipid Membrane // *PLoS One*. 2014. Vol. 9 Is. 12: e114152.
14. MacKerell A. D. Jr., Bashford D., Bellott M., Dunbrack R. L., Evanseck J. D., Field M. J., Fischer S., Gao J., Guo H., Ha S., Joseph-McCarthy D., Kuchnir L., Kuczera K., Lau F. T., Mattos C., Michnick S., Ngo T., Nguyen D. T., Prodhom B., Reiher W. E., Roux B., Schlenkrich M., Smith J. C., Stote R., Straub J., Watanabe M., Wiorkiewicz-Kuczera J., Yin D., Karplus M. All-atom empirical potential for molecular modeling and dynamics studies of proteins // *Journal of Physical Chemistry B*. 1998. Vol. 102. Is. 18. P. 3586–3616.
15. Jorgensen W. L., Chandrasekhar J., Madura J. D., Impey R. W., Klein M. L. Comparison of simple potential functions for simulating liquid water // *J. Chem. Phys.* 1983. Vol. 79. Is. 2. P. 926–935.
16. Shao Q., Hall C. K. Binding Preferences of Amino Acids for Gold Nanoparticles: A Molecular Simulation Study // *Langmuir*. 2016. Vol. 32 Is. 31. P. 7888–7896.

17. Heinz H., Vaia R. A., Farmer B. L., Naik R. R. Accurate Simulation of Surfaces and Interfaces of Face-Centered Cubic Metals Using 12–6 and 9–6 Lennard-Jones Potentials // *J. Phys. Chem. C*. 2008. Vol. 112. Is. 44. P. 17281–17290.

18. Vanommeslaeghe K., Hatcher E., Acharya C., Kundu S., Zhong S., Shim J., Darian E., Guvench O., Lopes P., Vorobyov I., MacKerell A. D. Jr. CHARMM General Force Field: A Force field for Drug-Like Molecules Compatible with the CHARMM All-Atom Additive Biological Force Field // *J. Comput. Chem.* 2010. Vol. 31. Is. 4. P. 671–690.

19. Yu W., He X., Vanommeslaeghe K., MacKerell A. D. Jr. Extension of the CHARMM General Force Field to Sulfonyl-Containing Compounds and Its Utility in Biomolecular Simulations // *J. Comput. Chem.* 2012. Vol. 33. Is. 31. P. 2451–2468.

20. Darden T., York D., Pedersen L. Particle mesh ewald: An  $n \log(n)$  method for ewald sums in large systems // *J. Chem. Phys.* 1993. Vol. 98. Is. 12. P. 10089–10092.

*Материал поступил в редколлегию 01.03.2018*

**N. Yu. Kruchinin, M. G. Kucherenko**

*Laser and Information Center of Biophysics  
Orenburg State University  
13 Pobedy Ave, Orenburg, 460018, Russian Federation*

*kruchinin\_56@mail.ru, rphys@mail.osu.ru*

#### **MOLECULAR DYNAMICS SIMULATION OF CONFORMATIONAL STRUCTURES POLYAMPHOLYTES ON THE SURFACE OF GOLD NANOPARTICLE**

Using molecular dynamics we studied the nature of the location polyampholytes on the surface of spherical gold nanoparticles, including adsorbed on the macrochain molecules of eosin. As a result of the molecular dynamics simulation, equilibrium conformational structures of polyampholyte polypeptides adsorbed on the surface of a spherical gold nanoparticle were obtained. A description is given of the radial distribution of the density of the links of a macromolecule adsorbed on the surface of a spherical nanoparticle on the basis of a special mathematical model of the conformational structure of a polymer created using the statistical theory of macromolecules. The dependences of the average radial concentration of atoms of polyampholyte polypeptides with differentiation by the types of links, as well as the eosin molecules adsorbed on the macrochain on a gold nanoparticle, are constructed. Approximating curves calculated on the basis of the statistical theory of macromolecules are given. The obtained results can be used to create nanosystems with a specified character of the arrangement of dye molecules, which can be used to create a luminescence-optical sensor of the concentration of molecular (including singlet) oxygen.

*Keywords:* molecular dynamics, polyampholytes, gold nanoparticle, organic dyes, polypeptides.

*For citation:*

Kruchinin N. Yu., Kucherenko M. G. Molecular Dynamics Simulation of Conformational Structures Polyampholytes on the Surface of Gold Nanoparticle. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 86–94. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-86-94

**М. В. Кручинина<sup>1,3</sup>, В. Н. Кручинин<sup>2</sup>, В. А. Володин<sup>2</sup>  
Я. И. Прудникова<sup>1</sup>, А. А. Громов<sup>1</sup>**

<sup>1</sup> Научно-исследовательский институт терапии и профилактической медицины – филиал Федерального государственного бюджетного научного учреждения «Федеральный исследовательский центр Институт цитологии и генетики СО РАН» ул. Б. Богаткова, 175/1, Новосибирск, 630089, Россия

<sup>2</sup> Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН пр. Акад. Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия

<sup>3</sup> Новосибирский государственный медицинский институт Минздрава России Красный пр., 52, Новосибирск, 630091, Россия

*kruchmargo@yandex.ru*

## **СПЕКТРОСКОПИЯ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА СЫВОРОТКИ КРОВИ У ПАЦИЕНТОВ С КОЛОРЕКТАЛЬНЫМ РАКОМ С РАЗЛИЧНОЙ ЛОКАЛИЗАЦИЕЙ МЕТАСТАЗОВ (ПИЛОТНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ)**

Исследованы спектры комбинационного рассеяния света (КРС) образцов жидкой сыворотки крови у 68-ми человек: 19-ти условно здоровых лиц без онкологической патологии и 49-ти человек с колоректальным раком (разделенных на 3 группы в зависимости от локализации метастазов) с целью определить возможности использования КРС жидкой сыворотки крови в дифференцировании пациентов с колоректальным раком (КРР) с различной локализацией метастазов. Интенсивности пиков при 1005, 1157 и 1520 см<sup>-1</sup> в КРС-спектрах у больных КРР по сравнению со здоровыми лицами оказались достоверно ниже, коррелируя со стадией заболевания и наличием метастазов, что позволяет рассматривать КРС сыворотки крови как перспективный диагностический подход при колоректальном раке, в том числе на ранних стадиях развития болезни. Диагностическая точность данного метода при проведении ROC-анализа в дифференцировании местно-регионарного КРР от метастатического составила AUC = 0,91 (0,82; 0,95) (95 % доверительный интервал), в различении пациентов с метастазами в печень от таковых внепеченочных – AUC = 0,73.

*Ключевые слова:* комбинационное рассеяние света, сыворотка крови, колоректальный рак.

### **Введение**

Колоректальный рак (КРР) является одним из наиболее распространенных злокачественных новообразований и по смертности занимает второе место в мире среди онкологических заболеваний [1; 2]. Определение стадии заболевания остается наиболее значимым фактором в прогнозе общей выживаемости. У больных с I стадией заболевания после хирургического лечения 5-летняя выживаемость составляет более 90 %, в

то время как в метастатической форме заболевания (IV стадия) она не превышает 5 %. При этом раннее выявление отдаленных метастазов (МТС) даже в продвинутых стадиях КРР предполагает резекцию отдельных метастатических узлов с последующим улучшением прогноза. Вместе с тем весьма актуальна оценка эффективности проведенной терапии в отдаленные сроки [3; 4].

Поэтому наряду с использованием традиционных подходов в скрининге КРР и мониторинговании пациентов поиск новых

*Кручинина М. В., Кручинин В. Н., Володин В. А., Прудникова Я. И., Громов А. А.* Спектроскопия комбинационного рассеяния света сыворотки крови у пациентов с колоректальным раком с различной локализацией метастазов (пилотное исследование) // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 2. С. 95–100.

чувствительных методов и высокоспецифичных маркеров заболевания с акцентом на ранние стадии, а также раннее выявление прогрессирования (в том числе с выявлением локализации отдаленных МТС) остаются важными клиническими задачами [5].

Среди современных подходов, используемых в диагностике онкологических заболеваний, спектроскопия комбинационного рассеяния света (КРС, Raman-спектроскопия) в настоящее время занимает особое место как чувствительный, неразрушающий, малоинвазивный аналитический метод [6; 7]. Кроме того, КРС не требует сложной пробоподготовки; для исследования можно использовать различные ткани и жидкости организма в неизменном виде, что особенно важно для биологии и медицины [8; 9]. Метод КРС с успехом использовался для медицинской диагностики (в том числе диагностики онкологических заболеваний) в последние десятилетия [6–9]. Цель данного исследования – определить возможности использования КРС сыворотки крови в дифференцировании пациентов с колоректальным раком с различной локализацией МТС.

### Материалы и методы

Обследованы 68 человек: 19 условно здоровых лиц (средний возраст  $53 \pm 8$  лет) без онкологической патологии, патологии внутренних органов и 49 пациентов (средний возраст  $52 \pm 9$  лет, 22 женщины, 27 мужчин) с КРР различных локализаций. Пациенты были разделены на 3 группы в зависимости от локализации метастазов: в 1 группу вошли 15 пациентов с местно-регионарным КРР (7 из них имели вторую, 8 – третью стадию заболевания), 2 группу составили 18 больных с МТС только в печень (12 из них имели одиночные МТС, остальные – множественные, размеры узлов варьировали от 16 до 92 мм в диаметре). Третья группа включала 16 пациентов с внепеченочными МТС (в том числе в надключичные лимфоузлы, легкие, кости, головной мозг).

Исследование выполнено с одобрения Комитета биомедицинской этики Федерального государственного бюджетного научного учреждения «Научно-исследовательский институт терапии и профилактической медицины» (29.11.2016, протокол № 123). Все

пациенты подписали информированное согласие на участие в исследовании.

Использовалась сыворотка крови обследуемых, полученная центрифугированием цельной крови, взятой натощак, со скоростью 2 000 об./мин в течение 20 мин.

Спектры КРС жидкой сыворотки крови пациентов записывались в диапазоне  $500\text{--}2000\text{ см}^{-1}$  с помощью спектрометра с тройным монохроматором T64000 (Horiba Jobin Yvon, France) при комнатной температуре. Для возбуждения использовалась линия  $\text{Ag}^+$  лазера с длиной волны 514,5 нм, спектральное разрешение составляло  $1,5\text{ см}^{-1}$ . В качестве детектора использовалась кремниевая матрица фотоприемников, охлаждаемая жидким азотом. Применялась приставка для микроскопических исследований КРС. Мощность лазерного пучка, доходящего до образца, составляла 2–3 мВт (размер пятна 5–6 мкм). При анализе спектров КРС оценивали интенсивность пиков в условных единицах. В качестве эталонного сигнала при записи спектров КРС от каждой серии образцов использовался сигнал от монокристаллического кремния; этот сигнал был стабилен с точностью до 1–2%. Условия для записи всех спектров КРС были абсолютно одинаковыми: мощность лазера стабилизирована, размер пятна и глубина резкости контролировались с помощью микроскопа с точностью в несколько процентов, сигнал собирался с приповерхностного слоя сывороток. Так как все сыворотки были визуально прозрачны в видимом свете, глубина этого слоя определялась не поглощением и диффузным рассеянием света в сыворотке, а глубиной резкости используемого объектива, которая составляла несколько микрометров. Стабильные условия экспериментов позволяют сравнивать интенсивность пиков КРС с высокой степенью достоверности.

Достоверность различия показателей оценивали по критериям Стьюдента, Пирсона в случае, когда распределение подчинялось нормальному закону; в случаях отклонения распределения от нормального закона использовались непараметрические критерии ( $U$ -критерий Манна – Уитни, Колмогорова – Смирнова). Во всех процедурах статистического анализа критический уровень значимости нулевой гипотезы ( $p$ ) принимался равным 0,05. Для оценки значимости интенсивности пиков Raman-спектров с точки зрения дифференцирования пациентов с КРР

с метастазами различных локализаций был использован ROC-анализ.

### Результаты и обсуждение

Площади пиков в диапазоне 1 005–1 520 см<sup>-1</sup> Raman-спектров оказались достоверно ниже у больных КРР по сравнению со здоровыми лицами ( $p < 0,0001-0,05$ ) (рис. 1), коррелируя со стадией процесса ( $r = -0,68, p < 0,001$ ) и наличием метастазов ( $r = -0,57, p < 0,003$ ). При этом соотношение интенсивности пиков 1157/1520 см<sup>-1</sup> было наибольшим в группе сравнения с последующим достоверным снижением от группы с местно-регионарными метастазами к группе с метастазами в печень ( $p < 0,05-0,01$ ). У пациентов с внепеченочными метастазами интенсивность

всех пиков спектра оказалась минимальной (рис. 1, кривая 4).

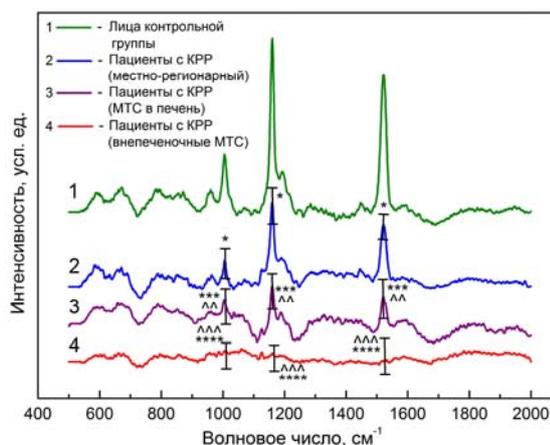


Рис. 1. Спектры комбинационного рассеяния света образцов жидкой сыворотки крови больных КРР и лиц группы сравнения

Площадь пиков комбинационного рассеяния света у больных с КРР с различной локализацией МТС и в группе сравнения ( $M \pm m$ )

Положение пика, см <sup>-1</sup>	Площадь пика, усл. ед.			
	группа сравнения (n = 19)	1 группа КРР местно-регионарный (Т2–3) (n = 15)	2 группа КРР МТС в печень (Т4) (n = 18)	3 группа КРР внепеченочные МТС (Т4) (n = 16)
1005	990 ± 84	557 ± 103 *	387 ± 90 ***^	129 ± 78 ***^^##
1157	2570 ± 301	2004 ± 264 *	908 ± 115 ***^	712 ± 132 ***^^##
1520	3258 ± 190	2404 ± 162 **	714 ± 135 ***^^	474 ± 108 ***^^##

Примечание: М – среднее значение; m – стандартная ошибка среднего; \* – статистическая значимость (p) отличия от группы сравнения (\* –  $p < 0,05$ , \*\* –  $p < 0,02$ , \*\*\* –  $p < 0,0001$ ); ^ – статистическая значимость (p) отличия от 1-й группы (^ –  $p < 0,05$ , ^^ –  $p < 0,02$ , ^^ –  $p < 0,0001$ ); # – статистическая значимость (p) отличия от 2-й группы (# –  $p < 0,05$ , ## –  $p < 0,01$ ).

Наиболее выраженное дифференцирование пациентов с различной локализацией метастазов выявлено по интенсивности пиков при 1005, 1157, 1520 см<sup>-1</sup> (см. таблицу). По данным ROC-анализа для совокупности пиков по выявлению метастатических стадий (группы 2 и 3) от регионарного КРР (группа 1) AUC составила 0,91 (0,82; 0,95) (95 % доверительный интервал). Дифференцирование между пациентами с МТС только в печень (группа 2) и внепеченочными (группа 3) установило AUC = 0,73 (рис. 2).

К настоящему времени в литературе нет единого строгого мнения о принадлежности этих пиков, хотя большинство авторов связывают их появление с группой каротинов, чаще с β-каротином. Внешне спектр β-каротина [10] очень похож на спектры, наблюдаемые в нашей и других работах, где исследовалась сыворотка крови [10; 11]. Тем не менее, поскольку сыворотка крови имеет сложный биохимический состав, который весьма трудно полностью описать, мы бы не стали приписывать появление

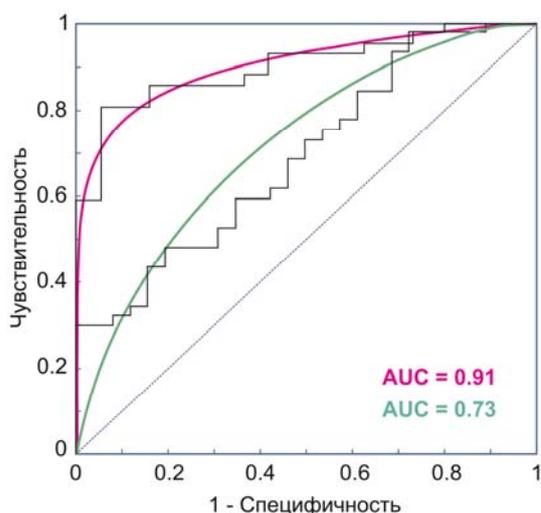


Рис. 2. ROC-анализ диагностической значимости метода КРС (для всей совокупности пиков 1005–1520  $\text{см}^{-1}$  спектра). Красная кривая – дифференцирование пациентов с местно-регионарным КРР (группа 1) от таковых с метастатическим КРР (группы 2 и 3); AUC = 0,91. Зеленая кривая – дифференцирование пациентов с МТС в печень (группа 2) от таковых с внепеченочными метастазами (группа 3); AUC = 0,73

этих пиков строго  $\beta$ -каротину, хотя его вклад в характерный вид спектра, вероятно, весьма велик. Одна из современных точек зрения на различный уровень  $\beta$ -каротина в сыворотке крови пациентов с КРР и лиц группы сравнения заключается в ключевой роли  $\beta$ -каротина в пролиферации и апоптозе раковых клеток [11]. У лиц без онкологической патологии уровни пиков, приписываемых  $\beta$ -каротину велики, что указывает на нормальный уровень метаболизма и большой вклад в апоптоз чужеродных клеток, тогда как у пациентов с колоректальным раком уровень сигналов  $\beta$ -каротина значительно снижается. Возможно, его синтез в организме подавляется метаболитами растущей опухоли, причем уменьшение сигнала коррелирует с тяжестью заболевания. Строго говоря, различная интенсивность пиков спектров КРС в определенной степени отражает существующие различия в интегральных метаболомических профилях сывороток крови пациентов с КРР [12]. Метаболомический профиль изменяется в зависимости от локализации опухоли, и ответ хозяина на опухоль может меняться при развитии метастазирования [13]. Метастатическая болезнь биологически отлична от рака, не выходящего за пределы ткани про-

исхождения. Многие другие агрессивные опухоли провоцируют более (или менее) бурный ответ хозяина [14], который может также отличаться из-за локального воздействия опухоли. Например, опухоль может оказывать множество паракринных эффектов на микроокружение, кроме того, метаболические или воспалительные ответы окружающих нормальных тканей могут отличаться в случаях локализации метастазов в кишечнике, печени и других местах [15]. Подобные сдвиги, вероятно, сказываются на выраженности и соотношении пиков спектров КРС, демонстрирующих интегральный метаболомический профиль [16], что позволяет различить пациентов с КРР с различной локализацией МТС.

## Заключение

Таким образом, с помощью спектроскопии КРС сыворотки крови установлены достоверные различия интенсивности пиков, их соотношения, ассоциированные с различной локализацией метастазов у пациентов с КРР. Исследование сыворотки крови, предполагающее малую инвазивность, проведение анализа образцов в течение короткого временного интервала, получение данных по достаточной диагностической точности позволяют считать спектроскопию комбинационного рассеяния света перспективной в разработке новых диагностических подходов при колоректальном раке, в том числе на ранних стадиях и для выявления прогрессирования заболевания. Следует заметить, что специфичность предлагаемого теста вне использованных групп невелика: известно, что многие раковые заболевания уменьшают сигналы в спектрах КРС сыворотки крови при 1005, 1157, 1520  $\text{см}^{-1}$ , наблюдаемые и в нашей работе [17]. Более того, тяжелые системные или инфекционные заболевания типа цирроза печени, туберкулеза или пневмонии также способны уменьшать эти сигналы, что говорит об универсальной роли каротинов в метаболизме клеток. Тем не менее, спектроскопия КРС вполне может быть использована при создании простой скрининговой методики, что потребует дальнейших исследований в данном направлении для проведения внутренней и внешней валидации методики с большим объемом выборки обследуемых пациентов.

## Список литературы

1. Bartos A., Bartos D., Szabo B., Breazu C., Opincariu I., Mironiu A., Iancu C. Recent achievements in colorectal cancer diagnostic and therapy by the use of nanoparticles // *Drug Metabolism Reviews*. 2016. Vol. 48. No. 1. P. 27–46.
2. Fang L., Xuzhen Q., Haiquan C., Ling Q., Yumei G., Hui L., Guoqiang C., Gaoguang S., Xiaodong W., Fenjie L., Shuai G., Baohua W., Zhili Li. Lipid profiling for early diagnosis and progression of colorectal cancer using direct-infusion electrospray ionization Fourier transform ion cyclotron resonance mass spectrometry // *Rapid Commun. Mass Spectrom.* 2013. Vol. 27. P. 24–34.
3. Bunger S., Haug U., Kelly M., Posorski N., Klempt-Giessing K., Cartwright A., Fitzgerald S. P., Toner V., McAleer D., Gemoll T., Laubert T., Buning J., Fellermann K., Bruch H.-P., Roblick U. J., Brenner H., von Eggeling F., Habermann J. K. A novel multiplex-protein array for serum diagnostics of colon cancer: a case-control study // *BMC Cancer*. 2012. Vol. 12. P. 393–404.
4. Pathak S., Pandanaboyana S., Daniels I., Smart N., Prasad K. R. Obesity and colorectal liver metastases: Mechanisms and management // *Surg. Oncol.* 2016. Vol. 25. P. 246–251.
5. Sepulveda A. R., Hamilton S. R., Allegra C. J., Grody W., Cushman-Vokoun A. M., Funkhouser W. K. et al. Molecular biomarkers for the evaluation of colorectal cancer: guideline from the American Society for Clinical Pathology, College of American Pathologists, Association for Molecular Pathology, and American Society of Clinical Oncology // *J. Mol. Diagn.* 2017. Vol. 19. No. 2. P. 187–225.
6. Moreira L. M., Silveira L. Jr., Santos F. V., Lyon J. P., Rocha R., Zangaro R. A., Villaverde A. B., Pacheco M. T. T. Raman spectroscopy: A powerful technique for biochemical analysis and diagnosis // *Spectroscopy*. 2008. Vol. 22. P. 1–19.
7. Shaoxin L., Gong C., Yanjiao Z., Zhouyi G., Zhiming L., Junfa X., Xueqiang L., Lin L. Identification and characterization of colorectal cancer using Raman spectroscopy and feature selection techniques // *Optical Society of America*. 2014. Vol. 22. No. 21. P. 25895–25908.
8. Jenkins C. A., Lewis P. D., Dunstan P. R., Harris D. A. Role of Raman spectroscopy and surface enhanced Raman spectroscopy in colorectal cancer // *World J. Gastrointest. Oncol.* 2016. Vol. 8. No. 5. P. 427–438.
9. Jing W., Duo L., Juqiang L., Yun Yu., Zufang H., Yanping C., Jinyong L., Shanyuan F., Buhong L., Nenrong L., Rong C. Label-free detection of serum proteins using surface-enhanced Raman spectroscopy for colorectal cancer screening // *Journal of Biomedical Optics*. 2014. Vol. 19. No. 8. P. 087003(1–9).
10. Medipally D. K., Maguire A., Bryant J., Armstrong J., Dunne M., Finn M., Lyng F. M., Meade A. D. Development of a high throughput (HT) Raman spectroscopy method for rapid screening of liquid blood plasma from prostate cancer patients // *Analyst*. 2016.
11. Jang S. H., Lim J. W., Kima H. Mechanism of  $\beta$ -carotene-induced apoptosis of gastric cancer cells: involvement of Ataxia-Telangiectasia-Mutated // *Natural Compounds and Their Role in Apoptotic Cell Signaling Pathways: Ann. N. Y. Acad. Sci.* 2009. Vol. 1171. P. 156–162.
12. Feng S., Wang W., Tai I. T., Chen G., Chen R., Zeng H. Label-free surface-enhanced Raman spectroscopy for detection of colorectal cancer and precursor lesions using blood plasma // *Biomedical optics express*. 2015. Vol. 6. No. 9. P. 3494–3502.
13. Zhou Q., Peng R. Q., Wu X. J., Xia Q., Hou J. H., Ding Y., Zhou Q. M., Zhang X., Pang Z. Z., Wan D. S., Zeng Y. X., Zhang X. S. The density of macrophages in the invasive front is inversely correlated to liver metastasis in colon cancer // *J. Transl. Med.* 2010. Vol. 8. P. 13(1–9).
14. Giusca S. E., Zugun F. E., Tarcoveanu E., Carasevici E., Amalinei C., Caruntu I. D. Immunohistochemical study of colorectal cancer liver metastases: the immune / inflammatory infiltrate // *Rom J. Morphol. Embryol.* 2010. Vol. 51. No. 1. P. 73–79.
15. Meyerhardt J. A., Tepper J. E., Venook A. Special Series: Advances in GI Cancer // *J. Clin. Oncol.* 2015. Vol. 33. No. 16. P. 1717–1720.
16. Kong K., Kendall C., Stone N., Nottingham I. Raman spectroscopy for medical diagnostics – From in vitro biofluid assays to in vivo cancer detection // *Advanced Drug Delivery Reviews*. 2015. Vol. 89. P. 121–134.
17. Sahu A., Sawant S., Mangainc H., Krishna C. M. Raman spectroscopy of serum: an exploratory study for detection of oral cancers // *Analyst*. 2013.

**M. V. Kruchinina**<sup>1,3</sup>, **V. N. Kruchinin**<sup>2</sup>, **V. A. Volodin**<sup>2</sup>  
**Ya. I. Prudnikova**<sup>1</sup>, **A. A. Gromov**<sup>1</sup>

<sup>1</sup> *Research Institute of Internal and Preventive Medicine –  
Branch of the Institute of Cytology and Genetics SB RAS  
175/1 Boris Bogatkov Str., Novosibirsk, 630089, Russian Federation*

<sup>2</sup> *Rzhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS  
13 Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

<sup>3</sup> *Novosibirsk State Medical University  
52 Krasny Ave., Novosibirsk, 630091, Russian Federation*

*kruchmargo@yandex.ru*

### **SPECTROSCOPY OF COMBINATION SCATTERING OF THE LIGHT FOR BLOOD SERUM IN PATIENTS WITH COLORECTAL CANCER WITH VARIOUS LOCALIZATION OF METASTASES (PILOT STUDY)**

The spectra of combination scattering of the light (Raman) for samples of liquid serum in 68 people were studied: 19 conditionally healthy persons without oncological pathology and 49 people with colorectal cancer (divided into 3 groups depending on the localization of metastases) with the goal of determining the possibility of using Raman-spectroscopy for liquid serum in differentiating patients with colorectal cancer (CRC) with a various localization of metastases. The intensity of the peaks at 1005, 1157 and 1520  $\text{cm}^{-1}$  in Raman spectra in patients with CRC compared with healthy individuals turned out to be significantly lower, correlating with the stage of the disease and the presence of metastases, which makes it possible to treat serum by Raman-spectroscopy as a promising diagnostic approach in colorectal cancer, in including at the early stages of the development of the disease. The diagnostic accuracy of this method in performing ROC analysis in differentiating local-regional CRC from metastatic was AUC 0.91 (0.82; 0.95) (95 % confidence interval), in distinguishing patients with liver metastases from those extrahepatic – AUC 0.73.

*Keywords:* Raman scattering of light, blood serum, colorectal cancer.

*For citation:*

Kruchinina M. V., Kruchinin V. N., Volodin V. A., Prudnikova Ya. I., Gromov A. A. Spectroscopy of Combination Scattering of the Light for Blood Serum in Patients with Colorectal Cancer with Various Localization of Metastases (Pilot Study). *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 95–100. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-95-100

## СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

---

- Аликулов Муйсин Нортошевич** – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физики Каршинского инженерно-экономического института, Карши, Узбекистан
- Бардаханов Сергей Прокопьевич** – доктор физико-математических наук, профессор Института теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН, Новосибирск; Бурятский государственный университет, Улан-Удэ; профессор, заведующий лабораторией Новосибирского государственного технического университета, Новосибирск
- Борисов Геннадий Михайлович** – инженер Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН, преподаватель Новосибирского государственного университета
- Виноградов Дмитрий Андреевич** – младший научный сотрудник отдела теплофизических проблем ядерной энергетики Объединенного института высоких температур РАН, Москва
- Вихорев Валентин Вадимович** – лаборант-исследователь Института теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН, студент Новосибирского государственного университета
- Володин Владимир Алексеевич** – доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН, Новосибирск
- Гольдорт Вениамин Гершевич** – кандидат технических наук, старший инженер Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН, Новосибирск
- Грек Генрих Рувимович** – доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Института теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН, Новосибирск
- Громов Андрей Александрович** – кандидат медицинских наук, старший научный сотрудник, руководитель группы исследования гемостаза лаборатории клинических биохимических и гормональных исследований терапевтических заболеваний Научно-исследовательского института терапии и профилактической медицины – филиала Федерального исследовательского центра «Институт цитологии и генетики СО РАН», Новосибирск
- Журавлёв Константин Сергеевич** – доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН, Новосибирск
- Завьялов Алексей Павлович** – лаборант Института теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН, Новосибирск
- Зобов Константин Владимирович** – аспирант Института теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН, Новосибирск
- Ивочкин Юрий Петрович** – кандидат технических наук, заведующий лабораторией отдела теплофизических проблем ядерной энергетики Объединенного института высоких температур РАН, Москва
- Клементьева Ирина Борисовна** – кандидат физико-математических наук, научный сотрудник отдела теплофизических проблем ядерной энергетики Объединенного института высоких температур РАН, Москва
- Ковалёв Александр Анатольевич** – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН, Новосибирск
- Козлов Виктор Владимирович** – доктор физико-математических наук, профессор, главный научный сотрудник Института теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН, профессор Новосибирского государственного университета
- Кочубей Сергей Александрович** – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН, Новосибирск

- Кручинин Владимир Николаевич** – кандидат химических наук, научный сотрудник Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН, Новосибирск
- Кручинин Никита Юрьевич** – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры радиофизики и электроники Оренбургского государственного университета
- Кручинина Маргарита Витальевна** – доктор медицинских наук, ведущий научный сотрудник Научно-исследовательского института терапии и профилактической медицины – филиала Федерального исследовательского центра «Институт цитологии и генетики СО РАН», доцент Новосибирского государственного медицинского университета Новосибирск
- Кудашкин Дмитрий Вячеславович** – магистрант второго года обучения Новосибирского государственного университета
- Кучеренко Михаил Геннадьевич** – доктор физико-математических наук, профессор, директор центра лазерной и информационной биофизики Оренбургского государственного университета
- Ледовских Дмитрий Васильевич** – кандидат физико-математических наук, научный сотрудник Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН, Новосибирск
- Литвиненко Юрий Алексеевич** – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Института теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН, Новосибирск
- Малин Тимур Валерьевич** – старший инженер Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН, Новосибирск
- Муминов Хикмат Халимович** – доктор физико-математических наук, профессор, академик АН РТ, заведующий сектором теоретической физики Физико-технического института им. С. У. Умарова АН РТ, Душанбе, Республика Таджикистан
- Палатников Михаил Николаевич** – доктор технических наук, Институт химии и технологии редких элементов и минерального сырья им. И. В. Тананаева ФИЦ КНЦ РАН, Апатиты
- Прудникова Яна Игоревна** – аспирант Научно-исследовательского института терапии и профилактической медицины – филиала Федерального исследовательского центра «Институт цитологии и генетики СО РАН», Новосибирск
- Рубцова Наталия Николаевна** – доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник, заведующая лабораторией Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН, Новосибирск
- Саломатов Александр Владимирович** – ведущий инженер ОАО «АК Транснефть», Москва
- Саломатов Владимир Васильевич** – доктор технических наук, профессор, главный научный сотрудник Института теплофизики им. С. С. Кутателадзе СО РАН, Новосибирск
- Сидоров Николай Васильевич** – доктор физико-математических наук, профессор Института химии и технологии редких элементов и минерального сырья им. И. В. Тананаева ФИЦ КНЦ РАН, Апатиты
- Сызранцев Вячеслав Валерьевич** – кандидат физико-математических наук, заместитель директора по научной работе Института физического материаловедения СО РАН, Улан-Удэ
- Тепляков Игорь Олегович** – кандидат технических наук, старший научный сотрудник отдела теплофизических проблем ядерной энергетики Объединенного института высоких температур РАН, Москва

---

**Теплякова Наталья Александровна** – кандидат физико-математических наук, Институт химии и технологии редких элементов и минерального сырья им. И. В. Тананаева ФИЦ КНЦ РАН, Апатиты

**Титов Роман Алексеевич** – Институт химии и технологии редких элементов и минерального сырья им. И. В. Тананаева ФИЦ КНЦ РАН, Апатиты

**Труфанов Дмитрий Юрьевич** – научный сотрудник Института теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН, Новосибирск

**Шмаков Андрей Геннадиевич** – кандидат химических наук, заместитель директора по науке Института химической кинетики и горения им. В. В. Воеводского СО РАН, доцент Новосибирского государственного университета

**Шокиров Фарход Шамсидинович** – кандидат физико-математических наук, доцент, ведущий научный сотрудник сектора теоретической физики Физико-технического института им. С. У. Умарова АН РТ, Душанбе, Республика Таджикистан

## ИНФОРМАЦИЯ ДЛЯ АВТОРОВ

---

«Сибирский физический журнал» публикует обзорные, оригинальные и дискуссионные статьи, посвященные научным исследованиям и методике преподавания физики в различных разделах науки, соответствующих направлениям подготовки на кафедрах физического факультета НГУ. Журнал издается на русском языке, однако возможна публикация статей иностранных авторов на английском языке.

1. Очередность публикации статей определяется их готовностью к печати. Рукописи, оформленные без соблюдения правил, к рассмотрению не принимаются.

Вне очереди печатаются краткие сообщения (не более четырех журнальных страниц), требующие срочной публикации и содержащие принципиально новые результаты научных исследований, проводимых в рамках тематики журнала.

Рекламные материалы публикуются при наличии гарантии оплаты, устанавливаемой по соглашению сторон.

2. В журнале печатаются результаты, ранее не опубликованные и не предназначенные к одновременной публикации в других изданиях. Публикация не должна нарушить авторского права других лиц или организаций.

Направляя свою рукопись в редакцию, авторы автоматически передают учредителям и редколлегии права на издание данной статьи на русском или английском языке и на ее распространение в России и за рубежом. При этом за авторами сохраняются все права как собственников данной рукописи. В частности, согласно международным соглашениям о передаче авторских прав за авторами остается право копировать опубликованную статью или ее часть для их собственного использования и распространения внутри учреждений, сотрудниками которых они являются. Копии, сделанные с соблюдением этих условий, должны сохранять знак авторского права, который появился в оригинальной опубликованной работе. Кроме того, авторы имеют право повторно использовать весь этот материал целиком или частично в компиляциях своих собственных работ или в учебниках, авторами которых они являются. В этих случаях достаточно включить полную ссылку на первоначально опубликованную статью.

3. Направлять рукописи в редакцию авторам рекомендуется по электронной почте либо приносить в редакцию электронную версию (в форматах MS WORD – \*.doc, или \*.docx, или \*.rtf) на диске или флэш-памяти. Такая отправка исходных материалов значительно ускоряет процесс рецензирования.

Авторам предлагается посылать свои сообщения в наиболее сжатой форме, совместимой с ясностью изложения, в совершенно обработанном и окончательном виде, предпочтительно без формул и выкладок промежуточного характера и громоздких математических выражений. Не следует повторять в подписях к рисункам пояснений, уже содержащихся в тексте рукописи, а также представлять одни и те же результаты и в виде таблиц, и в виде графиков.

Рекомендованный объем присылаемых материалов: обзорные статьи – до 25-ти страниц, оригинальные материалы – до 12-ти страниц, краткие сообщения – до 4-х страниц. В любом случае объем рукописи должен быть логически оправданным.

Не рекомендуется предоставление электронных копий рукописей в формате LATEX. По техническим условиям издательства в этом случае рукопись будет преобразована редакцией в формат MS WORD, что может привести к значительному увеличению времени обработки рукописи и искажениям авторского текста.

Сокращений слов, кроме стандартных, применять нельзя. Все страницы рукописи должны быть пронумерованы.

4. При отправке файлов по электронной почте просим придерживаться следующих правил:

- указывать в поле subject (тема) название, номер журнала и фамилию автора;
- использовать attach (присоединение);
- в случае больших объемов информации возможно использование общеизвестных архиваторов (ARJ, ZIP, RAR);
- в состав электронной версии рукописи должны входить:
  - ✓ файл, содержащий текст рукописи со вставленными в него рисунками;
  - ✓ отдельные файлы с рисунками высокого качества;

- ✓ файл со сведениями об авторах (полностью фамилия, имя, отчество, ученые степень и звание, место работы, служебный и домашний адреса и телефоны, адрес электронной почты для оперативной связи);
- ✓ файл с переводом ФИО авторов, названия статьи, аннотации и ключевых слов на английский язык.

Авторы вставляют рисунки и таблицы в текст рукописи так, как считают нужным. Рукопись обязательно должна быть подписана автором, а при наличии нескольких авторов – всеми соавторами.

Редакция обращает внимание авторов на возможность и целесообразность использования цветного графического материала.

5. В начале рукописи должны быть указаны индекс УДК, инициалы и фамилии авторов, название учреждений, в которых выполнена работа, и их почтовый адрес, название статьи, аннотация, содержащая основные результаты и выводы работы (в английском варианте не менее 1 000 знаков, русский вариант должен соответствовать английскому), ключевые слова.

6. Параметры страницы: формат – А4; ориентация – книжная; поля (см): слева – 2,5; справа – 1; сверху – 2,5; снизу – 2,3; от края до нижнего колонтитула – 1,3.

7. Основной текст: стиль – «Обычный»: гарнитура (шрифт) Times New Roman (Сур), кегль (размер) 12 пунктов, абзацный отступ – 0,5 см, через 1,5 интервала, выравнивание – по ширине.

Итак, в начале первой страницы набираются:

- УДК – от левого поля, без абзацного отступа;
- фамилии, инициалы авторов – выравниваются по центру, без абзацного отступа;
- название организации, ее почтовый адрес, электронный адрес автора – выравниваются по правому полю;
- название статьи – по центру, все буквы прописные, без абзацного отступа;
- аннотация – по ширине, абзацный отступ – 0,5 см.
- ключевые слова – по ширине, абзацный отступ – 0,5 см.

После основного текста статьи и списка литературы – фамилии, инициалы авторов, название статьи, название организации, ее почтовый адрес, электронный адрес автора, аннотация, ключевые слова на английском языке.

**Например:**

УДК 29.19.37; 47.03.08

**Л. А. Боярский, А. Г. Блинов**

*Институт неорганической химии им. А. В. Николаева СО РАН  
пр. Акад. Лаврентьева, 3, Новосибирск, 630090, Россия*

*Новосибирский государственный университет  
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия*

*boy@che.nsk.su*

## **О ПРИРОДЕ ОСОБЕННОСТЕЙ ЭЛЕКТРОННЫХ СОСТОЯНИЙ В СИЛЬНО КОРРЕЛИРОВАННЫХ СИСТЕМАХ. АРГУМЕНТЫ И ФАКТЫ**

В рамках предложенной ранее двухжидкостной модели псевдощелевого состояния в купратах сформулирована гипотеза о решающей роли неоднородностей и отклонений от стехиометричности систем. Предложен механизм возникновения магнитных состояний типа волн спиновой плотности как выше, так и ниже температуры сверхпроводящего перехода.

*Ключевые слова:* высокотемпературные сверхпроводники, псевдощелевое состояние, неоднородности систем.

Основной текст статьи

Список литературы (в порядке цитирования)

*Материал поступил в редколлегию 14.01.2009*

L. A. Boyarsky, A. G. Blinov

*Institute of Inorganic Chemistry of SB RAS  
3 Lavrentyev Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

*Novosibirsk State University  
2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation*

*boy@che.nsk.su*

**ON NATURE OF ELECTRONIC STATES PECULIARITIES  
IN STRONG CORRELATED SYSTEMS.  
REASONS AND FACTS**

Within the framework of offered before two-fluid model of a pseudogap state in Cuprates the hypothesis about a crucial role of inhomogeneities and deviations from stoichiometricity of systems in this state is formulated. The mechanism of occurrence of magnetic states such as spin density waves both above and below of the temperatures of superconductivity transition is offered.

*Keywords:* highTc superconductors, pseudogap state, inhomogeneities of systems.

Подпись автора (авторов)

В тексте рукописи следует избегать аббревиатур, даже таких общепринятых, как ЭДС, ВТСП и т. п. Использование аббревиатур и простых химических формул в заголовках рукописей совершенно недопустимо. Следует писать: высокотемпературная сверхпроводимость, кремний, арсенид галлия и т. п., давая при необходимости соответствующую аббревиатуру или химическую формулу в тексте. Исключение могут составлять формулы сложных химических соединений. Каждое первое употребление аббревиатуры в тексте должно быть четко пояснено.

**Не следует:**

- производить табуляцию;
- разделять абзацы пустой строкой;
- использовать макросы, сохранять текст в виде шаблона и с установкой «только для чтения»;
- распределять текст по двум или более столбцам;
- расставлять принудительные переносы.

8. Таблицы должны быть напечатаны на отдельных страницах и иметь заголовки. В таблицах обязательно указываются единицы измерения величин.

9. Рисунки, число которых должно быть логически оправданным, четко выполняются на качественном принтере. В бумажном варианте рукописи рисунки должны быть присланы на отдельных листах. На обороте каждого рисунка указываются его порядковый номер, фамилии авторов и название. Подписи к рисункам оформляются также на отдельной странице. Следует использовать минимальное количество рисунков с ограниченным количеством деталей. Размер рисунка не должен быть больше обычной страницы (A4).

Фотоиллюстрации (после сканирования или с цифрового фотоаппарата) представляются в формате TIFF с разрешением не менее 300 dpi.

Векторные изображения (схемы, диаграммы, рисунки) создаются, как правило, в формате CorelDraw версий 6÷10 (\*.CDR) или Adobe Illustrator версий 7÷8 (\*.AI) и экспортируются в формат Windows Metafile (\*.WMF), размер изображения по ширине до 8 см (если изображение получается мелким и неудобочитаемым – ширина 15,5 см, изображение поместить на всю ширину страницы). Толщина линий не должна быть менее 0,2 мм.

Растровые (полутонные) изображения – форматы TIFF или GIF для черно-белых и серых (фото) изображений, JPEG для полноцветных изображений. Разрешение – не менее 300 dpi. Если на изображениях имеется текст или резкие границы между цветами, предпочтительнее использовать формат TIFF. Для иллюстраций в формате CorelDraw возможно предоставление файлов как WMF, так и CDR.

Файлы изображений при компоновке рукописи должны находиться в том же каталоге, что и основной документ и иметь имена, соответствующие номерам рисунков в рукописи (например, 09.tif или 22a.jpg).

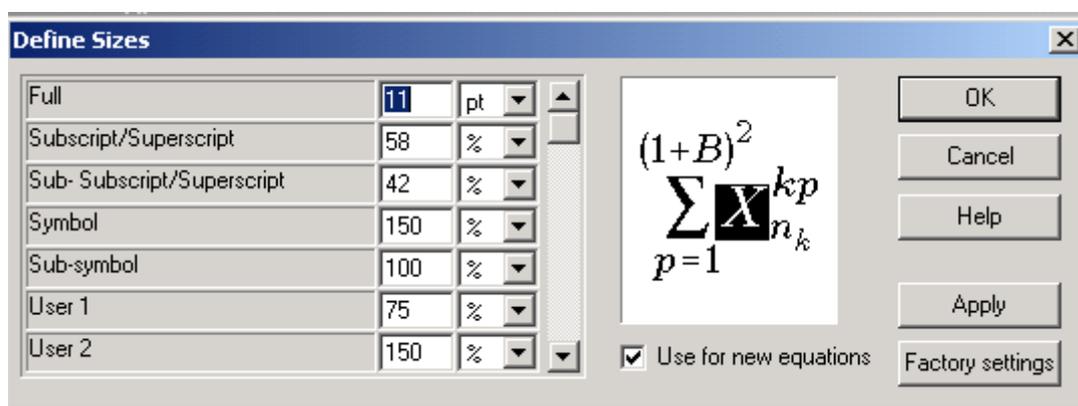
10. Подписи к рисункам в электронной версии рукописи выполняются под рисунками, форматирование по центру, отступ до и после абзаца – 3 пункта, точка в конце не ставится.

Если имеется несколько рисунков, объединенных одной подписью, они обозначаются русскими строчными буквами: а, б, в...

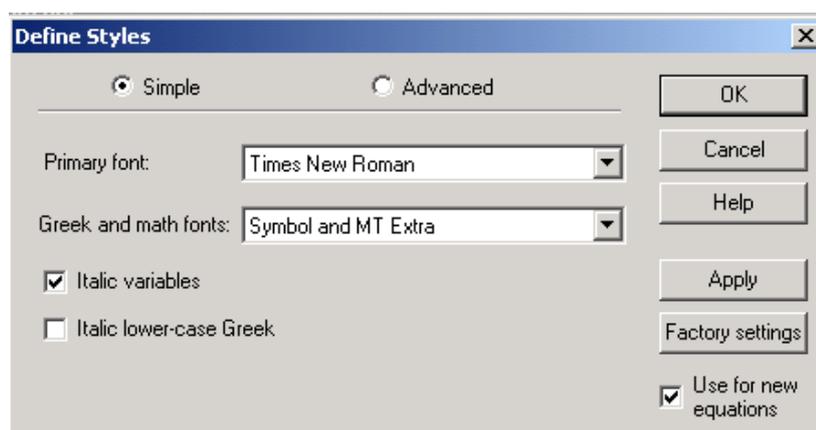
11. Формулы набираются в редакторе формул Microsoft Equation MathType в подбор к тексту или отдельной строкой по центру, **11 кеглем**.

Нумерация формул сквозная, в круглых скобках, прижатых к правому полю. Нумеровать следует только те формулы, на которые есть ссылки в тексте.

### Настройки редактора формул



а



б

12. Библиографические ссылки. В тексте в квадратных скобках арабскими цифрами указывается порядковый номер научного труда в библиографическом списке, например: [2; 3], [4–6] и т. д. В конце рукописи помещается список литературы в порядке упоминания в рукописи. Ссылки на российские издания приводятся на русском языке вне зависимости от наличия их перевода на иностранный язык. Библиографическое описание публикации включает: фамилию и инициалы автора, полное название работы, а также издания, в котором опубликована (для статей), город, название издательства, год издания, том (для многотомных изда-

ний), номер, выпуск (для периодических изданий), объем публикации (количество страниц – для монографии, первая и последняя страницы – для статьи).

Принятые сокращения городов: Москва – М.; Санкт-Петербург – СПб.; Петербург (до 1914 г.) – Пб.; Ленинград – Л.; Ростов-на-Дону – Ростов н/Д.; Нижний Новгород – Н. Новгород. Все остальные названия городов на территории бывшего Советского Союза пишутся полностью. Издательские фирмы, имеющие дочерние предприятия в других городах, при описании отделяются друг от друга точкой с запятой. Например: М.; Л. Или другой пример: Самара; Саратов и т. д. При написании издательств кавычки не употребляются. Перед названием отделения или филиала (после названия издательства) – точка. Например: Л.: Просвещение. Ленингр. отд-ние, 1991. При ссылке на книгу, монографию, справочник рекомендуется указывать общее количество страниц; при ссылке на статьи, разделы изданий приводится интервал номеров страниц.

Ссылки на интернет-источники, базы данных и т. п., не поддающиеся библиографическому описанию, оформляются в виде примечаний (сносок).

### Примеры библиографических описаний

*Захарьевский А. Н.* Интерферометры. М.: ГИОП, 1952. 296 с.

*Павельев А. В.* Селекция мод лазерного излучения // Методы компьютерной оптики / Под ред. В. А. Соифера. М.: Физматлит, 2000. Гл. 6.

*Raymond N.* Smart Zone Plate Interferometer // Applied Optics. 1974. Vol. 13. No. 5. P. 1093–1099.

*Брагинский А. В., Степанов А. И.* Статистическая физика макромолекул // Тр. ФТИАН. Проблемы микроэлектронной технологии. М.: Наука, 1994. Т. 8. С. 333–342.

*Коробейщиков Н. Г., Зарвин А. Е., Мадирбаев В. Ж.* Газодинамика импульсных сверхзвуковых недорасширенных струй: пространственно-временные характеристики // ЖТФ. 2004. Т. 74, вып. 8. С. 21–29.

*Гапонов С. А., Ермолаев Ю. Г., Косинов А. Д., Семенов Н. В., Смородский Б. В.* Экспериментальное и теоретическое исследование устойчивости сверхзвукового пограничного слоя на скользящем крыле // Вестн. Новосиб. гос. ун-та. Серия: Физика. 2008. Т. 3, вып. 3. С. 34–38.

*Bratman V. L., Fedotov A. E., Makhalov P. B., Rusin F. S., Panin A. N.* Short-Wave Orotrons and Oro-Multipliers // Vestnik Novosibirsk State University. Series: Physics. 2010. Vol. 5. Is. 4. P. 40–43.

13. В конце рукописи авторы могут поместить список использованных обозначений и сокращений.

14. Возвращение рукописи на доработку не означает, что рукопись уже принята к печати. Доработанный вариант необходимо прислать в редакцию в электронном виде с соблюдением всех требований вместе с ее начальной версией, рецензией и ответом на замечания рецензента не позднее двух месяцев со дня его отсылки. В противном случае первоначальная дата поступления рукописи при публикации не указывается.

15. Решение редакционной коллегии о принятии рукописи к печати или ее отклонении сообщается авторам.

В случае приема рукописи к публикации авторы должны прислать или передать в редакцию два бумажных экземпляра рукописи. Материалы печатаются на принтере на одной стороне стандартного (формат А4) листа белой бумаги. При этом тексты рукописи в бумажной и электронной версиях должны быть идентичными. Кроме того, к экземплярам бумажного варианта рукописи прилагаются таблицы, рисунки и подписи к ним на отдельных страницах.

16. К рукописи прилагаются письмо от учреждения, в котором выполнена работа, и экспертное заключение о возможности ее опубликования в открытой печати. Если коллектив авторов включает сотрудников различных учреждений, необходимо представить направления от всех учреждений.

Сообщения, основанные на работах, выполненных в учреждении (учреждениях), должны содержать точное название и адрес учреждения (учреждений), публикуемые в статье.

17. Рукопись обязательно должна быть подписана автором, а при наличии нескольких авторов – всеми соавторами. На отдельном листе прилагаются сведения об авторах.

18. После подготовки рукописи к печати редакция отправляет авторам электронную версию статьи с просьбой срочно сообщить в редакцию электронной почтой о замеченных опечатках для внесения исправлений в печатный текст.

19. После выхода журнала статьи размещаются на сайте физического факультета НГУ, а также на сайте Научной электронной библиотеки (elibrary.ru).

#### Адрес редакции

Физический факультет, к. 140 главного корпуса НГУ  
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090,  
редакция «Сибирского физического журнала»

тел. +7 (383) 363 44 25  
physics@vestnik.nsu.ru