

## Углеродные наноструктуры как пример самоорганизованной критичности

© А.В. Приходько<sup>1</sup>, О.И. Коньков<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Санкт-Петербургский государственный политехнический университет, Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: aleks@tuexph.stu.neva.ru

(Поступила в Редакцию 28 июня 2011 г.)

Проведено экспериментальное исследование механизма самоорганизованной критичности в области нано- и микроразмеров на примере углеродных многослойных нанотрубок и порошкообразного поликристаллического графита. Представлен классический эксперимент по формированию образцов в виде „песочной кучи“. Особенности эксперимента — регистрация сопротивления латеральных слоев при фиксированных углах наклона поверхности, на которой формируется образец, и проведение эксперимента в предпороговой области напряжений. Наблюдение степенного закона для зависимости сопротивления исследуемых образцов от числа порций материала свидетельствует о проявлении механизма самоорганизованной критичности.

### 1. Введение

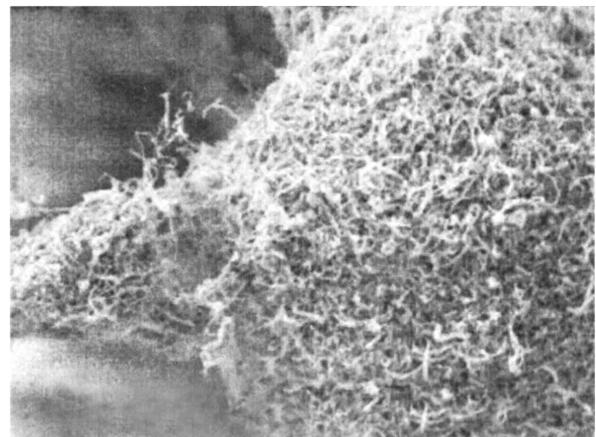
В соответствии с основными принципами концепции самоорганизованной критичности (SOC) [1] существует много гигантских диссипативных динамических систем, состоящих из большого числа взаимодействующих элементов, которые способны накапливать малые внешние возмущения. Математическим критерием самоорганизации является степенное поведение плотности вероятности размеров лавин, сход которых характеризует систему в критическом состоянии. Для классического в рамках SOC эксперимента с „песочной кучей“ этому состоянию соответствуют сходы лавин на латеральной поверхности. Такие системы, как магнитные вихри в сверхпроводниках [2], хорошо вписываются в рамки концепции SOC со степенным законом.

Цель настоящей работы — показать, что такие наноструктуры, как углеродные нанотрубки и порошкообразный поликристаллический графит, могут стать удобным объектом для экспериментального исследования SOC. Неотъемлемым свойством динамики гигантских диссипативных систем, состоящих из большого числа взаимодействующих элементов, являются цепные реакции — от лавин в нейронных сетях и снежных лавин до лавин магнитного потока в джозефсоновской среде. Экспериментальные исследования SOC в области наномасштабов ранее не проводились. В основе предлагаемого эксперимента лежит замеченное нами сходство динамики роста „песочной кучи“ с динамикой проводимости/электрического сопротивления в предлавинообразном состоянии. Экспериментальному обнаружению степенного поведения сопротивления и посвящена настоящая работа. Мы попытались выяснить условия контроля процесса лавинообразования с помощью воздействия электрическим полем при критических углах, связанных со сходом лавин.

### 2. Эксперимент

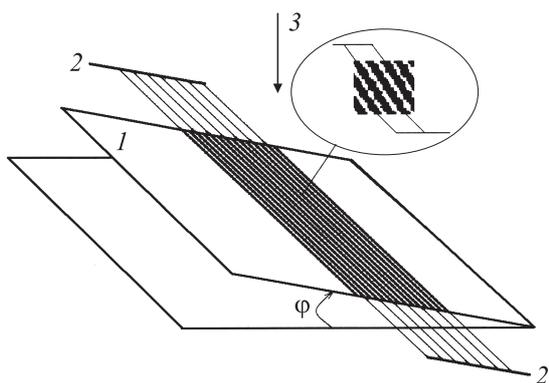
Для экспериментов по самоорганизованной критичности были выбраны образцы на основе углеродных многослойных нанотрубок (УМН). Образцы состояли из массива неориентированных УМН „Таунит“ [3] диаметром 20–70 нм и длиной более 150 нм. Гранулы на основе нанотрубок „Таунит“ представляют собой одномерные наномасштабные нитевидные образования со структурой спутанных пучков многостенных трубок. В основе способа получения лежит газозольное химическое осаждение (каталитический пиролиз — CVD) углеводородов ( $C_xH_y$ ) на катализаторах (Ni/Mg) при атмосферном давлении и температуре 580–650°C. На рис. 1 представлена фотография пучка УМН [3].

Также проведены исследования объектов микромасштаба — образцов порошкообразного поликристаллического графита с размером гранул 3–5 мкм.

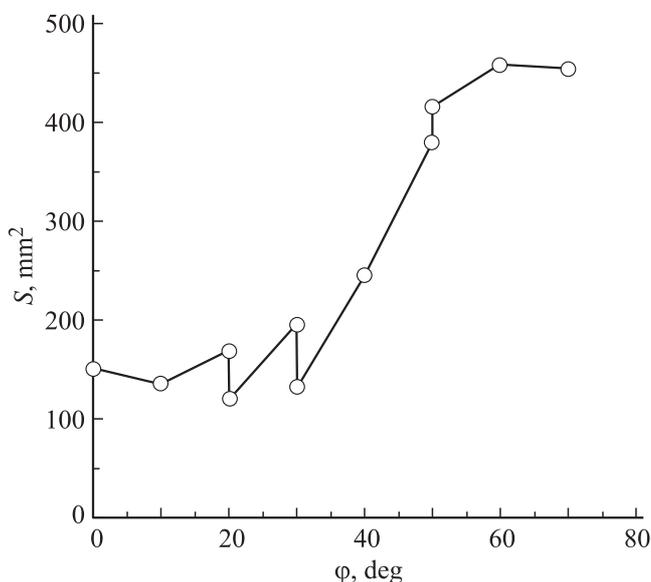


— 5 мкм

Рис. 1. Микрофотография пучка УМН „Таунит“ [3].



**Рис. 2.** Геометрия эксперимента: 1 — плоскость формирования образца ( $\varphi$  — угол наклона плоскости), 2 — токовые электроды, 3 — направление подачи порошка. На вставке — часть „гребенки“ токовых электродов.



**Рис. 3.** Зависимость площади растекания  $S$  графитового порошка от угла наклона плоскости токовых контактов  $\varphi$ .

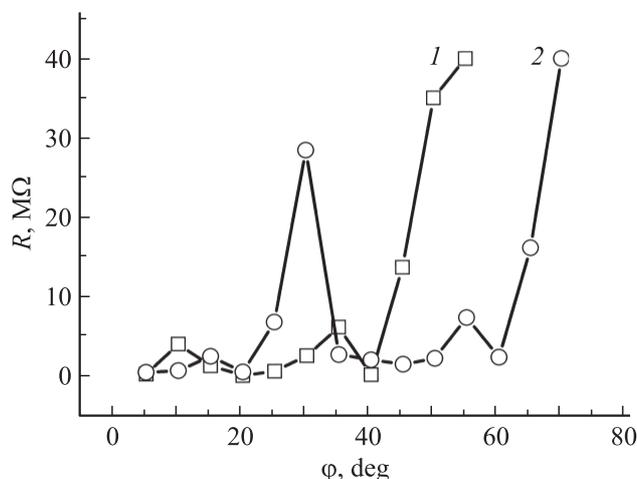
Образцы формировались на плоской поверхности, содержащей токовые контакты, при помощи известной техники создания „песочной кучи“ [4]. На рис. 2 представлена геометрия эксперимента. Измерялось сопротивление латеральных слоев образца в плоскости токовых контактов. Имелась возможность изменять угол наклона  $\varphi$  плоскости токовых контактов относительно горизонтальной поверхности. Угол  $\varphi$  при проведении эксперимента выбирался при условии  $\varphi \leq \varphi_c$ , где  $\varphi_c$  — критический угол, соответствующий развитию лавины. Такая геометрия позволяет уменьшить толщину изучаемого слоя и тем самым повысить чувствительность эксперимента. Порции порошка объемом  $\sim 10^{-5} \text{ cm}^3$  ( $n$  — число порций) подавались на плоскую поверхность, на которой расположены токовые контакты, при помощи электромагнитного дозатора с

частотой 1 Hz. Расстояние от дозатора до плоскости контактов  $h = 50 \text{ mm}$ . Диаметр сопла дозатора 1 mm.

Исследование статических вольт-амперных характеристик (ВАХ) образцов проводилось в режиме генератора тока. Структура токовых контактов имела вид „встречной гребенки“, общая площадь контактов которой  $S_0$  превышала площадь растекания порошкообразного образца  $S$  в 7 раз (рис. 2). При этом измерялось суммарное сопротивление образца. Расстояние между токовыми контактами 0.7 mm, количество контактов в гребенке — 10,  $S_0 = 700 \text{ mm}^2$ . Взаимосвязь между площадью растекания  $S$  и наклоном плоскости токовых контактов  $\varphi$  на примере образцов графита показана на рис. 3. Результат позволяет оптимально выбрать площадь токовых контактов  $S_0$  для учета полного сопротивления. Из рис. 3 следует, что оптимальная величина  $S_0$  должна превышать  $400 \text{ mm}^2$ .

### 3. Экспериментальные результаты

Придерживаясь основных понятий концепции SOC, мы провели эксперименты по определению критического угла, связанного с лавинообразованием и как следствие, с резким уменьшением толщины слоя над токовыми контактами. На рис. 4 представлена динамика изменения сопротивления для образцов графитового порошка (кривая 1) и порошка УМН (кривая 2) при одинаковом числе подаваемых порций порошка  $n = 200$ . Критические углы развития лавины  $\varphi_c$  определяются как углы резкого увеличения сопротивления, что соответствует в технике „песочной кучи“ резкому уменьшению толщины образца. Для графита  $\varphi_c = 50^\circ$ , для УМН  $\varphi_{c1} = 30^\circ$  и  $\varphi_{c2} = 70^\circ$ . Угол  $\varphi_{c1}$  для УМН связан, скорее всего, не с взаимодействием между нанотрубками, что является определяющим для SOC, а с взаимодействием между УМН и материалом поверхности токовых контактов



**Рис. 4.** Типичная зависимость сопротивления  $R$  от угла наклона  $\varphi$  для образцов графита (1) и УМН (2) при  $n = 200$ ,  $U = 2 \text{ V}$ .

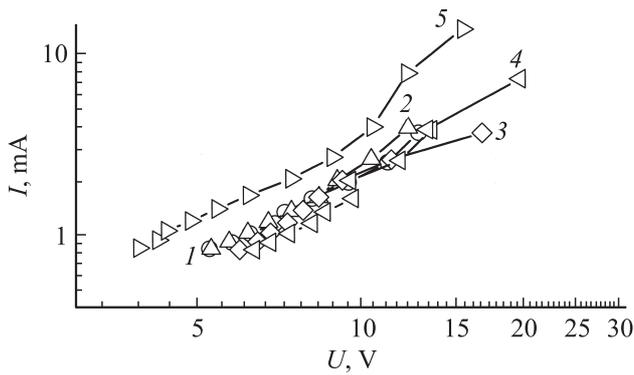


Рис. 5. ВАХ образцов УМН при  $n = 20$  (1), 50 (2), 100 (3), 130 (4) и 150 (5),  $\varphi = 55^\circ$ .

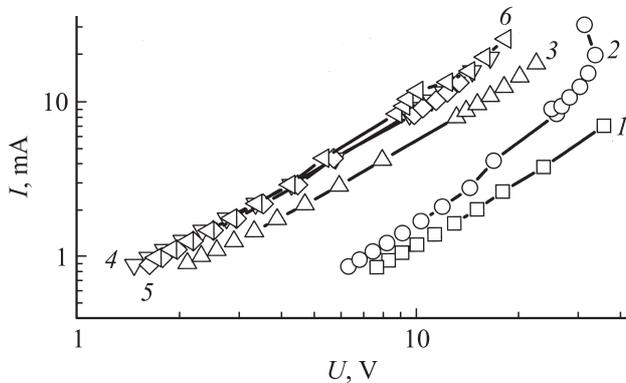


Рис. 6. ВАХ графитовых образцов при  $n = 20$  (1), 50 (2), 70 (3), 100 (4), 130 (5) и 150 (6),  $\varphi = 35^\circ$ .

тов и нами не рассматривается. Эксперимент проведен в слабом электрическом поле, что соответствует омическому участку ВАХ ( $U = 2$  В) при  $n = 200$ .

Для изучения влияния электрического поля на динамику развития лавин было проведено детальное исследование статических ВАХ образцов. К особенностям поведения ВАХ относится существование электрической неустойчивости  $S$ -типа. Предпробойный участок ВАХ с возрастанием тока регистрируется при напряжениях  $U_{\max} \sim 20$  В для всех исследуемых образцов. При  $U_{\min} = 2$  В наблюдается омическое поведение. Таким образом, величины  $U_{\max}$  и  $U_{\min}$  определяют предпробойный и омический участки ВАХ.

Отметим, что наблюдаемая в случае образцов УМН  $S$ -образная ВАХ типична для многослойных углеродных нанотрубок [5].

На рис. 5, 6 представлены ВАХ исследуемых образцов при углах наклона, близких к критическому углу развития лавин.

Установлена закономерность в поведении ВАХ с ростом числа порций  $n$  при предкритических углах лавинообразования ( $\varphi \leq \varphi_c$ ). В случае образцов УМН ВАХ практически не меняются при увеличении  $n$  до 130. Для графитовых образцов поведение ВАХ иное: они

не меняются при возрастании  $n$  выше 100. Изменение ВАХ при меньших значениях  $n$  может происходить за счет уменьшения сопротивления, например за счет термических эффектов.

Исходя из математического критерия SOC, выражающего степенную зависимость распределения размеров „песочной кучи“, мы предположили следующее. Обнаружение лавинообразной динамики в модели „кучи песка“ может быть связано с динамикой электрического сопротивления на склоне проводящей „песочной кучи“ при росте количества попадающих на электрические контакты порций порошка. Таким образом, непосредственное изменение размера кучи может регистрироваться как изменение количества порций порошка  $n$ , а механизм самоорганизованной критичности может проявляться как изменение сопротивления на склоне (сопротивления латеральных слоев). На рис. 7, 8 представлено поведение  $R(n)$  для исследуемых образцов при углах наклона  $\varphi$ , близких к критическим. Для всех образцов наблюдается степенной характер зависимости. Обращает на себя

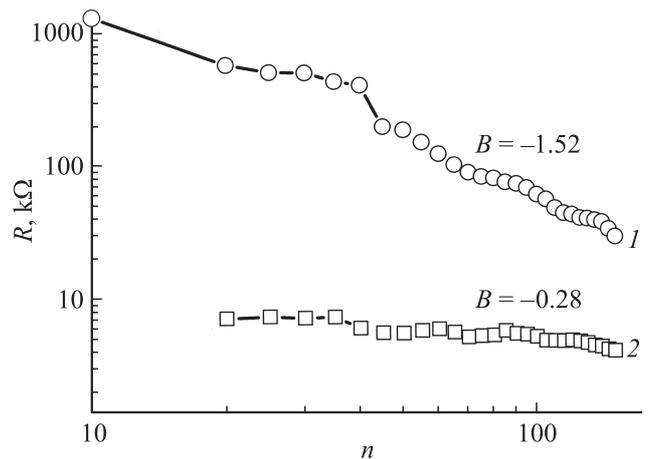


Рис. 7. Зависимость  $R$  от  $n$  для образцов УМН при  $U_{\min}$  (1) и  $U_{\max}$  (2).  $B$  — показатель наклона кривых,  $\varphi = 55^\circ$ .

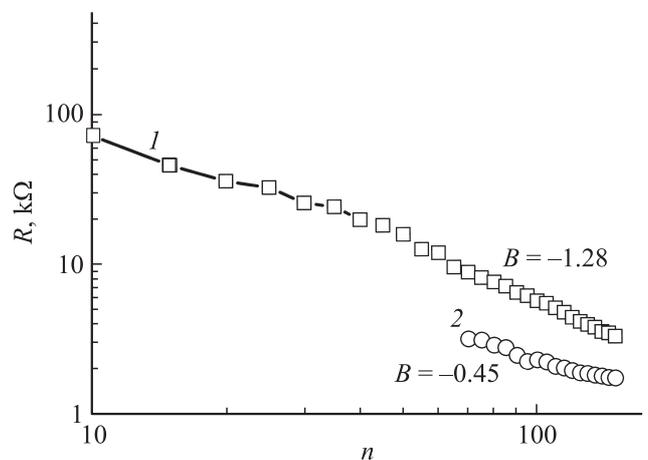


Рис. 8. Зависимость  $R$  от  $n$  для графитовых образцов при  $U_{\min}$  (1) и  $U_{\max}$  (2).  $\varphi = 35^\circ$ .

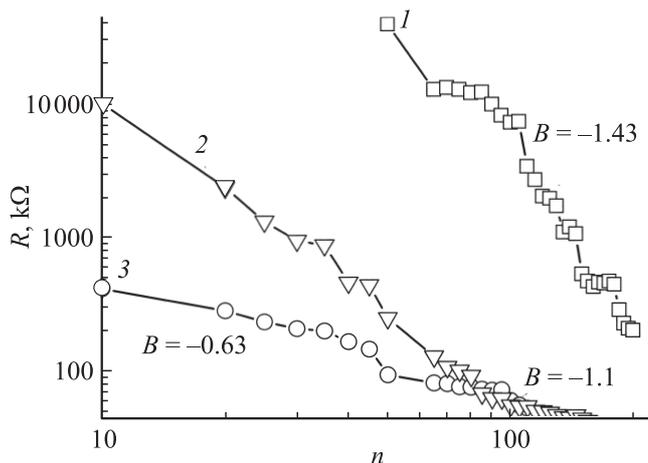


Рис. 9. Зависимость  $R$  от  $n$  для образцов УМН при  $\varphi = 50$  (1),  $30$  (2) и  $5^\circ$  (3).  $U = U_{\min}$ .

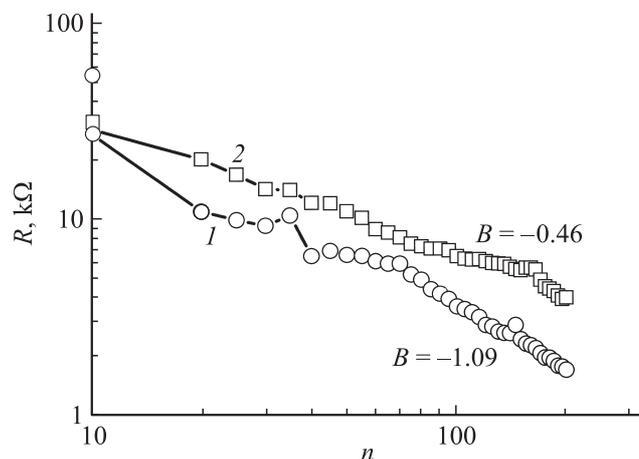


Рис. 10. Зависимость  $R$  от  $n$  для графитовых образцов при  $\varphi = 35$  (1) и  $5^\circ$  (2).  $U = U_{\min}$ .

внимание ярко выраженная особенность в поведении: показатель наклона кривых  $B$  сильно зависит от величины приложенного напряжения. Изменение показателя наклона в зависимости от напряжения может свидетельствовать о влиянии межгранульных токов на формирование критического состояния образца. В области предпробойных напряжений такое влияние максимально и может подавлять процесс лавинообразования, что эквивалентно изменению угла наклона.

При предкритических углах наклона  $\varphi$  для образцов УМН  $B = -1.52$  ( $U_{\min}$ ),  $B = -0.28$  ( $U_{\max}$ ); для графитовых образцов  $B = -1.27$  ( $U_{\min}$ ),  $B = -0.45$  ( $U_{\max}$ ). Полученное различие экспериментальных данных для УМН и графитового порошка может быть связано с различием размера частиц (nm и  $\mu\text{m}$ ), их геометрических характеристик и взаимодействия между ними.

Установлена еще одна особенность: показатель наклона кривых  $R(n)$  зависит от величины угла  $\varphi$  в омической области ВАХ (рис. 9, 10) при достаточно больших  $n$

( $n > 100$ ). Для всех образцов при увеличении угла  $\varphi$  происходит изменение показателя степенного закона. Можно говорить о схожести процессов лавинообразования при увеличении угла наклона плоскости контактов и уменьшении величины приложенного напряжения.

#### 4. Заключение

Нам удалось показать, что экспериментальная методика исследования сопротивления латеральных слоев при фиксированных углах наклона поверхности, на которой формируется образец на основе спутанных пучков многостенных трубок или порошкообразного поликристаллического графита, может использоваться для изучения SOC в технологии „песочной кучи“. Экспериментально показано, что возникающее самоподдерживающееся критическое состояние может управляться с помощью внешнего электрического воздействия. Обнаружено, что в случае предпробойных электрических полей, возможно, появляются аналоги термически управляемых лавин [6], которые в отличие от жестких сверхпроводников второго рода не вызывают разрушения критического состояния, а только изменяют (уменьшают) показатель степени в законе SOC.

В процессе работы у авторов возникли вопросы, которые, возможно, заинтересуют экспериментаторов.

1. Как происходит лавинообразование электрического потока в гранулированных наноструктурах с  $S$ -типом электрических неустойчивостей? (Возможная аналогия — лавина магнитного потока в искусственных джозефсоновских контактах).

2. Каковы механизмы зарождения лавин за наносекундные интервалы времени и лавинообразования в „активных песочных кучах“ с наноразмерами, например, при электрических и магнитных внешних воздействиях?

#### Список литературы

- [1] P. Bak, C. Tang, K. Wiesenfeld. Phys. Rev. Lett. **59**, 381 (1987).
- [2] S.L. Ginzburg, N.E. Savitskaya. Phys. Rev. E **66**, 026 128 (2002).
- [3] A.G. Tkachev. Carbon nanomaterials in clean energy hydrogen systems. NATO science for peace and security seires. Springer (2009). 301 p.
- [4] G.A. Held, D.H. Solina, D.T. Keane, W.J. Haag, P.M. Horn, G. Grinstein. Phys. Rev. Lett. **65**, 1120 (1990).
- [5] A. Prikhodko, O. Konkov, E. Terukov, A.Filippov. Full. Nanotub. Carb. Nanostruct. **19**, 1 (2010).
- [6] С.Л. Гинзбург, Н.Е. Савицкая. Лавины магнитного потока и самоорганизованная критичность в дискретных сверхпроводниках. Изд-во ПИЯФ РАН, Гатчина (2007). 159 с.