

05;12

## Размерный эффект в сверхнизкочастотном электрическом спектре возбуждения неустойчивости Бриджмена

© Е.Г. Фатеев

Институт прикладной механики УрО РАН,  
426001 Ижевск, Россия  
e-mail: fateev@ipm.uni.udm.ru

(Поступило в Редакцию 23 августа 2000 г.)

Установлено, что при увеличении размеров кристаллогидратов происходит существенное снижение амплитуды сверхнизкочастотного (СНЧ) электрического поля, способного вызвать глубокое падение у них механической устойчивости в условиях сильного одноосного сжатия. Существование этого явления продемонстрировано в экспериментах со взрывоподобной неустойчивостью Бриджмена на примере кристаллогидратов шавелевой кислоты  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ . Показано, что при увеличении размеров кристаллогидратов в СНЧ спектре устойчивости появляется не менее трех узких провалов на фоне более широкого и соответствующих им пиков в спектрах всплесков диэлектрической проницаемости. Эти явления можно объяснить на основе представления сжимаемых кристаллогидратов в виде дисперсных систем с нелинейными взаимодействиями на СНЧ в цепочках гигантских (с размерами дисперсной частицы) дипольных осцилляторов с переменными моментами.

### Введение

Глубокое падение порога механической устойчивости сильно сжимаемых кристаллогидратов под влиянием весьма слабых сверхнизкочастотных (СНЧ)  $10 < \omega_1 < 100$  Hz электрических полей продемонстрировано уже на модельных [1–3] и природных объектах [4,5]. Необходимо заметить, что такие явления наблюдаются в экспериментах с эффектом Бриджмена, который представляет собой взрывоподобную неустойчивость, возбуждаемую при сильном одноосном сжатии диэлектриков на наковальнях с открытыми границами в области высоких давлений  $P_c < 10$  GPa [6–10]. Причем это явление существует в СНЧ полях напряженностью  $E < 0.1–2$  kV/cm, которые в  $10^3–10^4$  раз слабее пробойных полей для подобных кристаллогидратов [11]. Интерес к этому эффекту обусловлен, в частности, глобальной распространенностью кристаллогидратов в литосфере и возможностью проникновения в нее лишь СНЧ электромагнитных колебаний, скин-слой для которых составляет не менее 10 km [12].

Обычно частотный спектр порога устойчивости  $P_c$  на наковальнях с рабочей площадкой диаметром  $d_1 = 5$  mm имеет один узкий глубокий провал в интервале частот  $20 < \omega_1 < 40$  Hz и второй более широкий в области  $\omega_2 \sim 10^4$  Hz. Глубина падения  $\Delta P = P_c(U = 0) - P_c(U)$  порога  $P_c$  растет в зависимости от амплитуды СНЧ импульсов напряжения  $U$  в соответствии с правилом  $\Delta P(U) \propto U^2$ . Причем для импульсов с амплитудой  $U \approx 65$  V для толщин образцов  $h \sim 0.25$  mm с разными кристаллогидратами максимальная относительная глубина провалов составляет  $\Delta P/P_c(U = 0) \approx 0.5$  [1–5].

В одном принципиальном эксперименте был также установлен и предсказанный ранее [2] для кристаллогидратов частотный сдвиг глубокого провала в СНЧ электрическом спектре  $P_c(\omega)$  [5]. Этот сдвиг следовал из

двух предложенных ранее моделей описываемого эффекта [3–5], но, как будет далее показано, это совпадение достаточно формально. В этой работе при проверке гипотезы о возможности существования СНЧ глубоких провалов в спектрах  $P_c(\omega)$  для кристаллогидратных объектов с большими характерными размерами были обнаружены принципиально новые результаты, противоречащие ранним модельным представлениям о локализованных на СНЧ микропробоях.

### Методика экспериментов

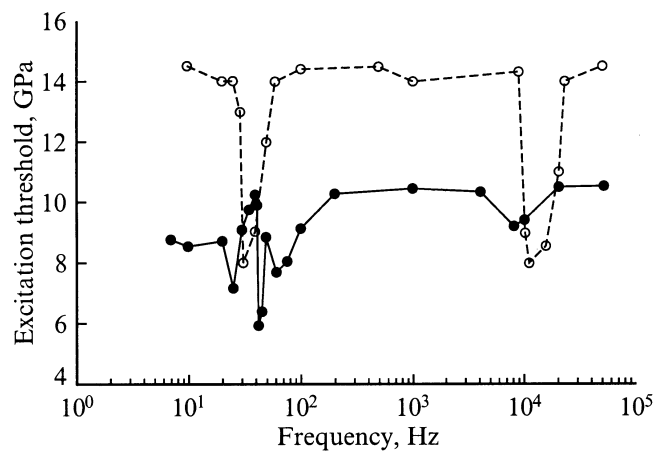
В экспериментах использовался модельный кристаллогидрат шавелевой кислоты  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ . Выбор этого объекта обусловлен технической возможностью проведения с ним большого цикла экспериментов с эффектом Бриджмена для набора достоверных статистических данных по порогу возбуждения  $P_c(\omega)$  на сверхнизких частотах главным образом из-за низкого у него  $P_c$ .

СНЧ электрический спектр  $P_c(\omega)$  для  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  находился по той же методике, что и для модельных соединений [3–5]. Скорость нагружения при одноосном сжатии на наковальнях Бриджмена (со вставками из сверхтвердого сплава ВК-8) составляла  $dP/dt \approx 0.1$  GPa/s при температуре  $T \sim 293$  K. При нахождении спектров  $P_c(\omega)$  для двух характерных размеров образцов проводили два цикла опытов сначала для наковален с диаметром рабочих плоскостей  $d_2 = 10$  mm, во втором цикле с  $d_1 = 5$  mm. В цикле с  $d_2 = 10$  mm на рабочую площадку наковален насыпали горку порошка так, что бы в предпороговых стадиях сжатия она уплотнялась до дискообразного тела с толщиной  $h_2 \sim 0.40$  mm. В опытах с наковальнями  $d_1 = 5$  mm средней толщины предвзрывного диска того же кристаллогидрата составляли  $h_1 \sim 0.25$  mm. Каждая точка в спектре получена в опытах с 10 взрывами.

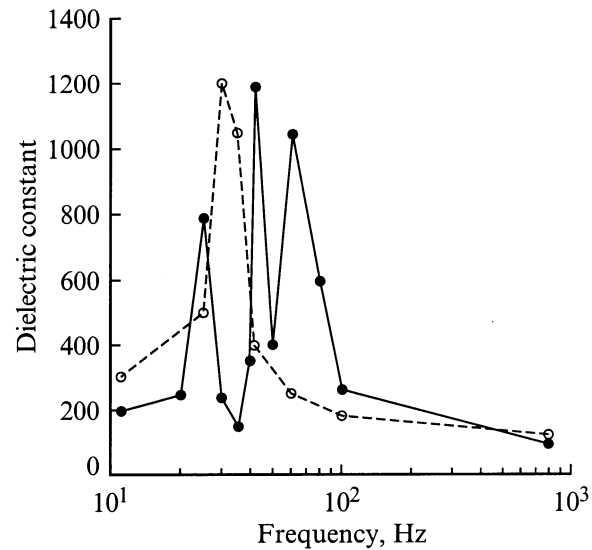
## Экспериментальные результаты

В результате экспериментов с наковальнями  $d_2 = 10$  mm в СНЧ спектре  $P_c(\omega)$  для  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  обнаружены глубокие провалы, форма, глубина и локализация которых оказались весьма отличными от тех, которые найдены в экспериментах с  $d_1 = 5$  mm, как показано для сравнения на рис. 1. Эти особенности наблюдаются на фоне общего снижения в  $\sim 1.5$  раза порога возбуждения эффекта Бриджмена во всем СНЧ спектре  $P_c(\omega)$  для  $d_2$  относительно уровня спектра для  $d_1$ . Подобный размерный эффект, однако, для твердых тел, находящихся во второй упругой стадии при сильном одноосном сжатии [13], установленный впервые в работе [14], легко объясняется в рамках термофлуктуационной теории прочности [15] и характером полей механических напряжений при данном отношении  $h/d$ . Заметим здесь, что форма СНЧ спектра  $P_c(\omega)$  для этого кристаллогидрата с наковальнями  $d_1$  в области  $25 < \omega_1 < 35$  Hz оказалась практически такой же, что и в ранних экспериментах [3]. Подчеркнем, что и в ранних опытах [3], и для данной работы образцы готовились из одной и той же партии кристаллогидрата  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ . Спектр  $P_c(\omega)$  для  $d_2$  имеет весьма широкую область глубокого СНЧ спада в диапазоне  $5 < \omega_1 < 100$  Hz. Причем в этой области спектр  $P_c(\omega)$  имеет сильно неоднородную структуру с тремя провалами в кратных частотных интервалах 21–27, 41–48, 58–68 Hz и высоким пиком на частотах 30–40 Hz вблизи самого глубокого провала. Средние значения порога в широком СНЧ спаде колеблются вблизи  $\sim 0.75 P_c(U=0)$ , тогда как в самой глубокой яме соответствуют  $\sim 0.5 P_c(U=0)$  и в пике почти совпадают с  $P_c(U=0)$ .

Дополнительно для прояснения природы провалов в спектре  $P_c(\omega)$  в довольно широком диапазоне СНЧ в условиях одноосного сжатия кристаллогидрата



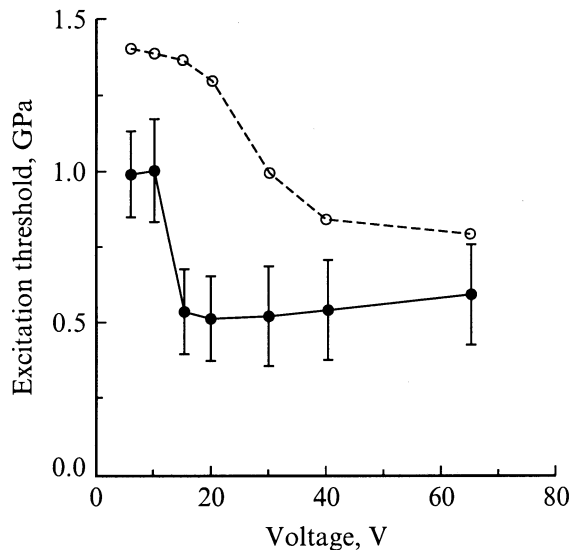
**Рис. 1.** Сверхнизкочастотные электрические спектры порога возбуждения эффекта Бриджмена  $P_c(\omega)$  для кристаллогидратов  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  с импульсами амплитудой  $U = 65$  V для наковален с диаметром рабочих площадок  $d_1 = 5$  mm (○) и  $d_2 = 10$  mm (●).



**Рис. 2.** Сверхнизкочастотный спектр диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(\omega)$  в момент максимального всплеска при сильном одноосном сжатии кристаллогидратов  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  (для импульсов с амплитудой  $U = 65$  V) для наковален с диаметрами рабочих площадок  $d_1 = 5$  mm (○) и  $d_2 = 10$  mm (●).

$\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  исследовались его СНЧ дисперсия диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(\omega)$  (методика измерений описана в [3]). Обнаруженная здесь при  $d_2 = 10$  mm немонотонная зависимость  $\varepsilon(\omega)$  для  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  показана в сравнении с подобной зависимостью для  $d_1 = 5$  mm на рис. 2. Видно, что в обоих случаях имеет место гигантский всплеск диэлектрической восприимчивости. Однако в области СНЧ для  $d_2 = 10$  mm обнаружена нетривиальная форма дисперсии  $\varepsilon(\omega)$  с пиками и ямами с отношениями значений  $\varepsilon$  в максимумах и минимумах спектра, достигающих до 10 раз с общим средним подъемом зависимости  $\varepsilon(\omega)$  на СНЧ в 20 раз выше значений  $\varepsilon_\infty \sim 6$ , как это показано на рис. 2. Отметим здесь, что гигантские значения в СНЧ дисперсии  $\varepsilon(\omega)$  в условиях одноосного сжатия поддерживаются в виде краткого всплеска в течение  $\Delta t \leq 1$  s [3–5]. На частотах вблизи  $\omega_1 \sim 10^4$  Hz в обоих случаях также имеются провалы, ранее идентифицированные с диэлектрическими потерями [1], однако при  $d_2$  провал в этой области относительно менее глубокий и широкий. Тогда как на СНЧ, наоборот, более простой по форме, но менее глубокий и широкий провал наблюдается для  $d_1$ .

Кроме этого, на двух характерных частотах  $\omega_1 \sim 42$  Hz (в глубоком провале) и  $\omega_1 \sim 200$  Hz (на стабильном участке) в спектре  $P_c(\omega)$  для  $d_2 = 10$  mm получена зависимость порога возбуждения  $P_c$  от амплитуды импульсов напряжения  $P_c(U)$  (рис. 3). Соответствующие зависимости для  $d_1$  (рис. 3) найдены при частотах  $\omega_1 \sim 32$  Hz (в глубоком провале) и также  $\omega_1 \sim 200$  Hz. Видно, что в случае с  $d_2$  зависимость  $P_c(U)$  имеет четко выраженный пороговый характер с резким падением



**Рис. 3.** Зависимость порога возбуждения эффекта Бриджмена для кристаллогидратов  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  от амплитуды импульсов напряжения на наковальнях с диаметром рабочей площадки  $d_1$  на частоте  $\omega \sim 33$  Hz и  $d_2$  при  $\omega \sim 42$  Hz. Значения  $d_1$  и  $d_2$  те же, что и на рис. 1.

критического давления  $P_c$  для  $\omega_1 \sim 42$  Hz при амплитудах  $U \sim 11\text{--}15$  V. Далее при увеличении  $U$  вплоть до 65 V дальнейшего падения  $P_c$  не происходит. Однако подобная зависимость для  $d_1$  на СНЧ имеет более монотонный характер, практически подчиняющийся правилу  $\Delta P(U) \propto U^2$  вплоть до амплитуд  $U \sim 35$  V с выходом на плато с минимальным значением порога для  $U > 40$ . Для  $\omega_1 \sim 200$  Hz вообще отсутствует какое-либо влияние амплитуды импульсов напряжений на порог  $P_c$  вплоть до 65 V для обоих характерных размеров.

## Обсуждение

Несмотря на статистический характер полученных здесь спектров  $P_c(\omega)$  и  $\varepsilon(\omega)$ , в диапазоне  $5 < \omega_1 < 100$  Hz существует их качественная корреляция. Это обстоятельство явно свидетельствует о связи процессов, приводящих к падению порога возбуждения эффекта Бриджмена на этих частотах с гигантскими всплесками СНЧ диэлектрической восприимчивости при сильном одноосном сжатии кристаллогидратов. Совершенно очевидно, что такими явлениями, как было отмечено ранее [3,4], не могут быть возможные в иных случаях переполаризации в водород-содержащих сегнетоэлектриках, каковыми являются соединения, подобные  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  [16], поскольку резонансные возбуждения доменных структур обычно имеются в диапазонах высоких и сверхвысоких частот  $\omega \sim 10\text{--}10^3$  MHz [17]. Кроме того, при средних давлениях порядка  $P > 0.3$  GPa практически у любых сегнетоэлектриков происходит демпфирование колебательных движений доменов [17].

Существенные противоречия с результатами данной работы возникают и у ранее предложенных моделей [3], в которых провалы в спектрах  $P_c(\omega)$  объясняются СНЧ локализацией максимума плотности энергии, вводимой в электрический пробой в микротрещине или в перколяционно прорастающий пробой.

Действительно, из ранних модельных соотношений [3–5] формально следует возможность сдвига провала по частоте при изменении некоторых параметров, например температуры, но вовсе не очевидно существование нескольких провалов в СНЧ диапазоне (рис. 1). Более того, при увеличении толщины образца и одинаковой величине гигантского всплеска диэлектрической проницаемости на СНЧ, из ранних моделей следует существенное уменьшение относительной глубины провалов, как это было бы свойственно для электрического пробоя в соответствии с правилом  $\Delta P/P_c(U=0) \propto U^2 h^{-2}$  [3,4]. Однако полученные здесь данные свидетельствуют о существовании размерного эффекта, имеющего противоположную ожидаемой для пробойных явлений тенденцию. При увеличении характерных размеров требуется меньшая амплитуда возбуждения, необходимая для появления одной и той же относительной глубины СНЧ провалов (рис. 3). Происходит также значительное расширение и возбуждение дополнительных пиков при увеличении размеров. Существует некоторый порог амплитуды СНЧ импульсов  $U_h$ , после превышения которого происходит резкое падение  $P_c$ , причем глубина падения  $\Delta P$  не подчиняется правилу  $\Delta P(U) \propto U^2$ , как это наблюдалось ранее [3].

Становится очевидным, что обнаруженные здесь эффекты имеют существенно нелинейную природу. Локализация же возбуждений на СНЧ дает основание считать, что нелинейность связана с процессами, происходящими в дисперсных системах с двойными электрическими слоями, каковыми, очевидно, и являются кристаллогидраты в условиях, индуцируемых в них при сильно неоднородном сжатии фазовых переходов типа частичной дегидратации [18,19].

Полученные здесь результаты могут быть объяснены, если рассмотреть характер колебательных процессов, по крайней мере, в цепочках, связанных кулоновскими взаимодействиями, неточечных осцилляторов с сильно переменными дипольными моментами (с плечом с размерами дисперсной частицы), как это показано в работе [18,19]. Условие с неточечностью диктуется плотной зернистой структурой описываемых дисперсных систем [20], а переменность моментов связана с сильной зависимостью уровня поляризации зарядов в двойных электрических слоях вокруг зерен от частоты и напряженности как локальных, так и внешних электромагнитных полей.

Результаты численных расчетов для ограниченных на концах одномерных цепей неточечных осцилляторов с переменными дипольными моментами с диссипацией и возбуждением с параметрами (средней величины зерен, дистанции между ними, уровнем максимально возможной поляризации зарядов и т.д.), характерными для

генерируемых при сильном одноосном сжатии дисперсных систем, показывают возможность существования обнаруженного здесь размерного эффекта [19]. Главной особенностью его является то, что при увеличении размера модельной цепочки уровень локальных всплесков поляризации в ней при фиксированной амплитуде СНЧ возбуждающего поля сильно растет в зависимости от вариации тех или иных параметров. Причем в первые несколько периодов после начала воздействия СНЧ электрическим полем имеет место резонансный основной и сателлитные возбуждения в районе  $\omega < 200$  Hz, переходящие еще через несколько периодов к обычной дисперсионной зависимости дебаевского типа.

Таким образом, обнаруженный здесь размерный эффект свидетельствует не в пользу возбуждений в кристаллогидратах СНЧ локализованных электрических пробоев между наковальнями, а, скорее, о возникновении на СНЧ локальных в пространстве и времени междипольных сжатий [19] или микропробоев, инициирующих падение порога возбуждения эффекта Бриджмена с кристаллогидратами на СНЧ.

## Список литературы

- [1] Фатеев Е.Г. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. Вып. 10. С. 48–52.
- [2] Фатеев Е.Г. // Письма в ЖТФ. 1994. Т. 20. Вып. 20. С. 83–88.
- [3] Фатеев Е.Г. // ЖТФ. 1996. Т. 66. Вып. 6. С. 93–105.
- [4] Фатеев Е.Г. // Докл. РАН. 1997. Т. 354. Вып. 2. С. 252–254.
- [5] Фатеев Е.Г. // Письма в ЖЭТФ. 1997. Т. 65. Вып. 12. С. 876–880.
- [6] Bridgman P.W. // Phys. Rev. 1935. Vol. 48. N 15. P. 825–847.
- [7] Bridgman P.W. // Proc. Am. Acad. Art. Sci. 1937. Vol. 71. N 9. P. 387–454.
- [8] Bridgman P.W. Studies in Large Plastic Flow and Fracture with Special Emphasis on the Effects of Hydrostatic Pressure. New York: McGraw-Hill, 1952. 444 p.
- [9] Гораздовский Т.Я. // Письма в ЖЭТФ. 1967. Т. 5. Вып. 3. С. 78–82.
- [10] Ярославский М.А. Реологический взрыв. М.: Наука, 1982. 192 с.
- [11] Воробьев А.А., Воробьев Г.А. Электрический пробой и разрушение твердых диэлектриков. М.: Высшая школа, 1966. 244 с.
- [12] Ярославский М.А., Капустян Н.К. // ДАН СССР. 1990. Т. 315. № 2. С. 352–354.
- [13] Левитас В.И. Большие упругопластические деформации материалов при высоких давлениях. Киев: Наукова думка, 1987. 232 с.
- [14] Ениколопян Н.С., Мхитарян А.А., Карагезян А.С., Хзарджян А.А. // ДАН СССР. 1987. Т. 292. № 4. С. 887–890.
- [15] Фатеев Е.Г., Хан В.П. // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. Вып. 20. С. 51–55.
- [16] Fukai M., Matsuo T. // J. Phys. Chem. Solids. 1989. Vol. 50. N 4. P. 743–751.
- [17] Физика сегнетоэлектрических явлений / Под ред. Г.А. Смоленского. Л.: Наука, 1985. 396 с.

- [18] Фатеев Е.Г. // Письма в ЖТФ. 2000. Т. 26. Вып. 14. С. 103–110.
- [19] Фатеев Е.Г. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 1. С. 92–105.
- [20] Челидзе Т.Л., Деревянко А.И., Куриленко О.Д. Электрическая спектроскопия гетерогенных систем. Киев: Наукова думка, 1977. 232 с.