

05.1; 05.2

©1994

# О ПРИРОДЕ ПРОВАЛОВ ПОРОГА ВОЗБУЖДЕНИЯ РЕОЛОГИЧЕСКОГО ВЗРЫВА В НИЗКОЧАСТОТНОМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ

*Е. Г. Фатеев*

Недавно обнаружено явление, связанное со значительными падениями порога возбуждения  $\bar{P}_c$  реологического взрыва (РВ) в переменном электрическом поле около двух НЧ:  $\nu_1 \sim 31$  Гц и  $\nu_2 \sim 11$  кГц [1]. Причем в опытах с кислым оксалатом аммония (КОА)  $\text{NH}_4\text{HC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$  провалы  $\bar{P}_c(\nu_1)$  и  $\bar{P}_c(\nu_2)$  вблизи их дна наблюдались в частотных диапазонах, отличающихся по ширине на 4 порядка (см. рис. 1, *a, г*). И если появление  $\bar{P}_c(\nu_2)$  можно объяснить диэлектрическими потерями, как показано в [1], то причина провала  $\bar{P}_c(\nu_1)$  не так тривиальна. В данной работе строится физическая модель эффекта, из которой следует, что провалы  $\bar{P}_c(\nu_1)$  и  $\bar{P}_c(\nu_2)$  — это проявления двух принципиально разных механизмов диссипации энергии поля, тесно связанных с условиями возбуждения РВ, найденными в [2–9].

Для прояснения механизма эффекта, обнаруженного с КОА, нами были проведены дополнительные опыты с веществами  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  (I) и  $\text{SC}(\text{NH}_2)_2$  (II) по методике, описанной в [1]. Но ни в (I), ни в (II) никаких особенностей не найдено (рис. 1, *a, г*). Такая разница в откликах на воздействие НЧ поля указывает, например, на отличия физических свойств КОА и (I–II) в предкритических (при  $\bar{P} < \bar{P}_c$ ) условиях неоднородного сжатия, когда, как показано в [8, 9], сложные соединения в процессах размытых фазовых переходов имеют флуктуации состава. В этот момент соединения находятся по существу в дисперсном состоянии с аномальной диэлектрической восприимчивостью в ВЧ и СВЧ полях [10, 11]. Подобные аномалии возможны и в НЧ поле, если одна из фаз дисперской системы имеет жидкое или квазижидкое состояние с высокой подвижностью в ней ионов и катионов (см., например, [12, 13]). Причем когда доля жидкой фазы находится в пределах  $\vartheta \sim 0.1–0.15$ , максимальные значения  $\varepsilon$  и  $\text{tg } \delta$  в НЧ дисперсии диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(\nu)$  и потерь  $\text{tg } \delta(\nu)$  могут превосходить обычные в  $10^3$  раз [13, 14]. Этой доли достаточно лишь для обволаки-

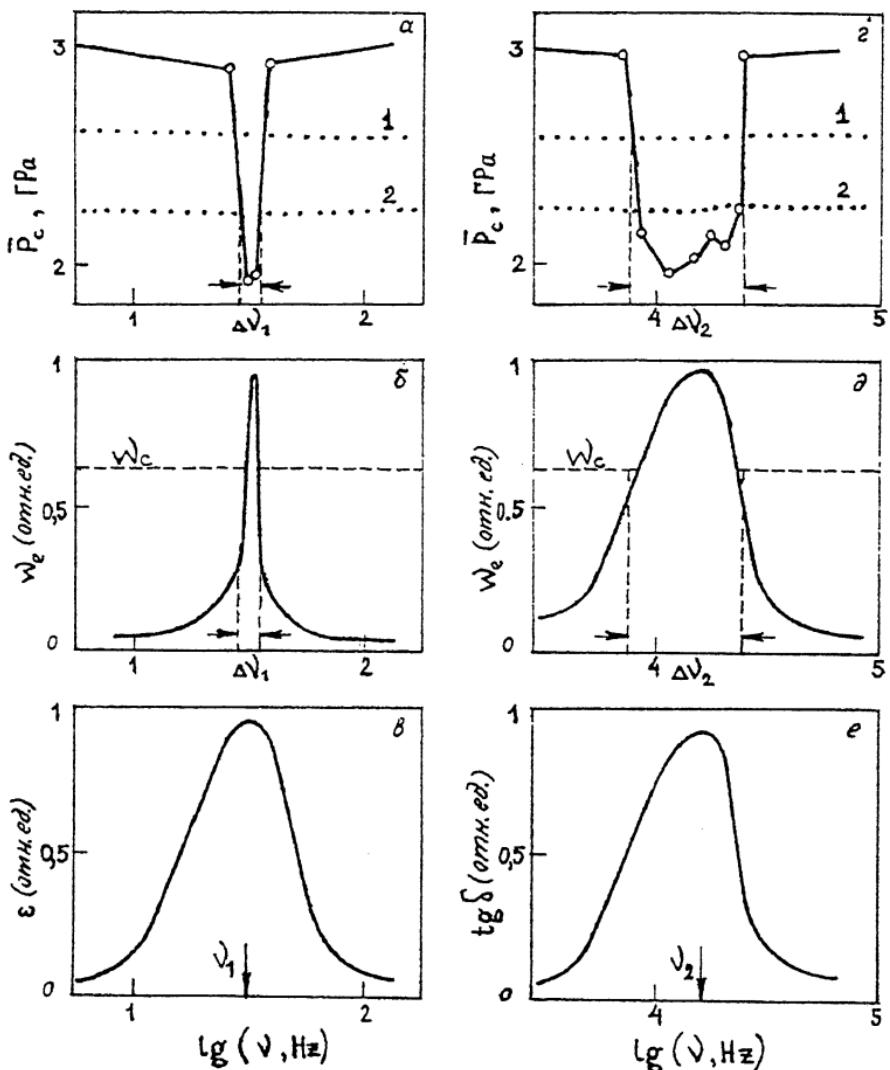


Рис. 1. Частотные зависимости порога возбуждения РВ  $\bar{P}_c(\nu)$  для КОА с узким провалом в интервале  $\Delta\nu_1 \sim 3$  Гц вблизи  $\nu_1 \sim 31$  Гц (a) и широким с  $\Delta\nu_2 \sim 3 \cdot 10^4$  Гц около  $\nu_2 \sim 11$  кГц (г), обнаруженные в [1]. Соответствующие провалам в предложенной модели частотные спектры: (б) ожидаемой плотности энергии, диссилируемой в пробое,  $w_e \propto \epsilon^3(\nu)$  с острым максимумом порядка  $w_{e,\max} \sim 10^3$  Дж/см<sup>3</sup> и (в) диэлектрической проницаемости  $\epsilon(\nu)$  с  $\epsilon_{\max} \sim 10^3$ ; (д) плотности энерговыделения  $w_e \propto \operatorname{tg}\delta(\nu)$ , наблюдаемой в [1], и (е) диэлектрических потерь  $\operatorname{tg}\delta(\nu)$ .

Точечными линиями в (a) и (г) представлены зависимости  $\bar{P}_c(\nu)$  без провалов для соединений 1 —  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  и 2 —  $\text{SC}(\text{NH}_2)_2$ . Штриховой линией в (б) и (д) отмечен порог  $w_c$ , выделяющий частотные диапазоны  $\Delta\nu_1$  и  $\Delta\nu_2$ , в которых вводимой  $w_e \gtrsim w_c$  достаточно для облегчения инициирования РВ.

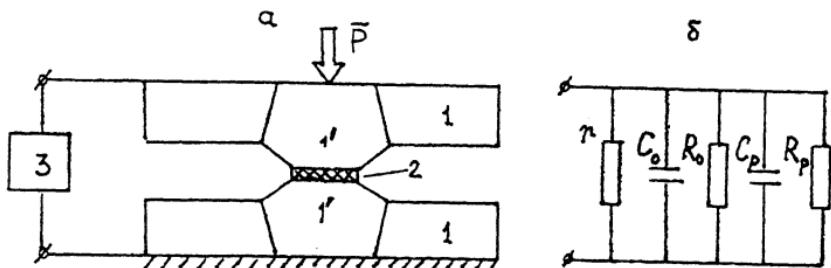


Рис. 2. Система сжатия с наложением НЧ поля (а) и эквивалентная электрическая схема замещения (б).

1 — наковальни Бриджмена, 2 — образец; 3 — генератор прямоугольных импульсов,  $C_0$  — емкость и  $R_0$  — сопротивление образца зажатого между твердосплавными частями (1) наковален,  $C_p$  и  $R_p$  — паразитные у наковален с воздушной прослойкой,  $r$  — сопротивление аппаратурных утечек.

вания частиц дисперской фазы пленкой в несколько молекулярных слоев. Очевидно, что при быстром изменении доли  $\vartheta$ , например при дегидратации соединений, индуцированной сжатием, НЧ отклики  $\varepsilon(\nu)$  и  $\operatorname{tg} \delta(\nu)$  могут быть весьма кратковременны. И поскольку в (I, II) веществах при полной дегидратации может оказаться  $\vartheta \sim 0.4 - 0.5$ , то вероятность существования у них продолжительных (до 1–5 с) откликов значительно меньше, чем для КОА, у которого  $\vartheta \sim 0.17$ .

Обсудим связь возможного резонансного роста  $\varepsilon(\nu)$  в НЧ поле с провалом  $P_c(\nu_1)$ . Даже кратковременный всплеск  $\varepsilon(\nu_1)$  вызовет процессы накопления электрической энергии  $w_e = 0.5 U_a Q(t)$  в параметрической емкости  $C_0(P, \nu, t)$ , образованной наковальнями и образцом, как показано на рис. 2. Можно показать, что в поле с однополярными прямоугольными импульсами любой длительности накопление заряда в  $C_0$  определяется из соотношения

$$Q(t) \simeq C_0(P, \nu, t) U_a \left(1 - e^{-t/\tau}\right), \quad (1)$$

где  $\tau = r R_0 R_p (C_0 + C_p) / (R_0 + R_p + r)$  — постоянная времени системы,  $t$  — время зарядки,  $U_a$  — амплитудное значение напряжения в импульсе. При характерных в опытах с КОА [1] значениях  $C_0 \sim 20 \text{ пФ}$ ,  $R_0 \sim 2 \text{ МОм}$ ,  $C_p \sim 25 \text{ пФ}$ ,  $R_p \sim 50 \text{ МОм}$  и  $r \sim 1 \text{ кОм}$  получим  $\tau \sim 3 \cdot 10^{-2} \text{ с}$  и, соответственно, время полной зарядки  $\Delta t \sim 10^{-1} \text{ с}$ . Если же  $C_0 \propto \varepsilon(\nu)$  вырастет на 2–3 порядка, то  $\tau \sim 3 \text{ с}$  и, следовательно,  $\Delta t \sim 5 - 10 \text{ с}$ . Отсюда ясно, что достижение в  $C_0$  максимально возможной  $w_e$  ограничено жесткими временными рамками, ибо пик дисперсии  $\varepsilon(\nu)$  может быстро спадать и уходить по частоте, как указано выше.

Напряженность поля  $E \simeq \varepsilon U_p / d$  с предкритической толщиной образцов КОА  $d \sim 2.5 \cdot 10^{-2} \text{ см}$  в максимуме  $\varepsilon \sim$

$\sim 10^2 - 10^3$  может достигать значений  $E \sim 10^2 - 10^3$  кВ/см. Этого поля в принципе достаточно для электрического пробоя, так как в подобных КОА диэлектриках пороговые значения  $E_c \gtrsim 5 \cdot 10^2$  кВ/см [15].

Однако в условиях неоднородных механических напряжений при сжатии диэлектриков типа КОА между наковальнями возможны пробои в полях с  $E_c \lesssim 10 - 10^2$  кВ/см, что реальнее, если учесть лимит времени, ограничивающий накопление энергии в  $C_0$ . Решающую роль в этом случае должны играть локальные срывы механических напряжений, обусловленные образованием микротрешин еще при  $\bar{P} < \bar{P}_c$  [3]. В зазор трещин инжектируются электроны и жесткие кванты [3, 16]. По оценкам [3], за время  $\Delta t \sim 10^{-5}$  с в зазоре сечением  $S_d \sim 10^{-5}$  мм<sup>2</sup> может оказаться  $n_0 \sim 10^{10}$  мм<sup>-3</sup> заряженных частиц со спектром энергий вплоть до  $10^2$  кэВ. Для зажигания же несамостоятельного разряда даже в инертных газах при давлении в них  $10^5$  Па в полях  $E \sim 10$  кВ/см достаточно  $n_0 \sim 10^7$  мм<sup>-3</sup> с энергиями порядка  $10^2$  эВ [17]. В опытах с КОА в подобных зазорах легко окажутся ионы OH<sup>-</sup> и NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, образующие плазму, диссилирующую энергию разряда. Плотность энергии, вводимую в столб разряда высотой  $d$  и сечением  $S_d$ , можно из формулы [18]:

$$w_e \simeq \frac{1}{2} C_0 E_p^2 \frac{e}{S_d} \left[ 1 - (1 + \beta n_0 t)^{-A} \right], \quad (2)$$

где поле  $E_0$  в столбе выражается через  $E$  как

$$E_p \simeq E \left( 1 + \beta n_0 t \right)^{A/2}. \quad (3)$$

Здесь  $A = 2S_d \mu e / C_0 d \beta$ ,  $n_0$  — концентрация частиц в максимуме эмиссии,  $\mu$  — их подвижность,  $e$  — заряд и  $\beta$  — коэффициент рекомбинации. Время ввода энергии ограничивается  $t_c \simeq (n_0/n_c - 1)/\beta n$ , когда при  $n_c$  и соответствующем  $E_0$  происходит быстрая рекомбинация частиц в плазме. Подставляя  $t_c$  в (2) с учетом (3) легко получить

$$w_e \simeq \frac{1}{2} C_0 E^2 \frac{d}{S_d} \left[ \left( \frac{n_0}{n_c} \right)^{A/2C_0} - \left( \frac{n_c}{n_0} \right)^{A/2C_0} \right]. \quad (4)$$

Естественно полагая  $n_0/n_c \gtrsim 1$ , видим, что при любом отношении  $A$  к  $C_0$  в (4) член в квадратных скобках не меньше единицы, обозначим  $\psi \gtrsim 1$ . Тогда, выражения  $E$  и  $C_0$  через  $\varepsilon$ , найдем, что

$$w_e \simeq \frac{1}{2} \varepsilon^3 (\nu) \varepsilon_0 (S_0/S_d) (U_a/d)^2 \psi. \quad (5)$$

Из (5) ясно следует, почему провал  $\bar{P}_c(\nu_1)$  значительно острее, чем  $\bar{P}_c(\nu_2)$ . Так, если  $\bar{P}_c(\nu_2)$  обусловлен потерями, описываемыми  $w_e \propto \operatorname{tg} \delta(\nu) U_p C_0 \nu$  [13], то в области  $\nu_1$  энергия поля диссирирует в пробое, как  $w_e \propto \varepsilon^3(\nu)$ , т.е. кривая дисперсии  $w_e(\nu)$  гораздо более острая, чем  $\varepsilon(\nu)$  (рис. 1,б,в).

Подставляя в (5) характерные значения  $S_0 \sim 0.2 \text{ см}^2$ ,  $d \sim 0.25 \cdot 10^{-1} \text{ см}$ ,  $U_p \sim 65 \text{ В}$  и ожидаемые  $S_d \sim 10^{-3} - 10^{-4} \text{ см}^2$  и  $\varepsilon \sim 10^2 - 10^3$  при  $\varepsilon_0 \simeq 10^{-13} \text{ Ф/см}$ , найдем, что в пробое может вводиться не менее  $w_e \sim 10^2 - 10^3 \text{ Дж/см}^3$ , поскольку  $\psi \gtrsim 1$ . В то же время плотность упругой энергии, диссириющей в РВ без наложения поля, можно оценить из  $w_s(0) \simeq \Delta V \bar{P}_c(0)/V$  [3]. Здесь  $\Delta V$  — полное изменение объема образца  $V$  в системе сжатия при выборе в РВ и  $\bar{P}_c(0)$  — порог при  $E = 0$ . Задавшись обычными в опытах с КОА величинами  $\Delta V \simeq (2-4) \cdot 10^{-9} \text{ м}^3$  и  $V \sim 5 \cdot 10^{-9} \text{ м}^3$  при  $\bar{P}_c(0) = 3 \cdot 10^9 \text{ Па}$ , получим соизмеримое с  $w_e$  значение  $w_s(0) \sim (1-2) \cdot 10^3 \text{ Дж/см}^3$ . Отсюда следует, что порог  $\bar{P}_c(\nu)$ , коррелирующий с наблюдаемым вкладом упругой энергии  $w_s(\nu)$ , зависит от  $w_e(\nu)$  как  $\bar{P}_c(\nu) \propto w_s(\nu) - w_s(0) - w_e(\nu)$ . То есть острый пик  $w_e(\nu)$  вблизи  $\nu_1$ , отражающий гигантскую НЧ дисперсию  $\varepsilon(\nu)$ , или широкий максимум около  $\nu_2$  из-за  $\operatorname{tg} \delta(\nu)$  “вырежут” соответствующие провалы в зависимости  $\bar{P}_c(\nu)$ , как показано на рис. 1. Причем глубина обоих провалов в наших оценках соотносится с напряженностью поля как  $\bar{P}_c(E) \propto E^2$ . Именно такая зависимость  $\bar{P}_c(E)$  и была найдена в экспериментах [1].

Таким образом, из представленной модели следует, что узкий провал порога возбуждения РВ в КОА на весьма низкой частоте  $\nu_1$  вполне может быть связан с непродолжительными ( $< 5-10 \text{ с}$ ), но гигантскими НЧ всплесками диэлектрической восприимчивости  $\varepsilon(\nu)$ , приводящими к электрическому пробою. А второй широкий НЧ провал на более высокой частоте связан с диэлектрическими потерями энергии поля с соответствующими тепловыделениями, снижающими порог инициирования РВ. В заключение отметим, что наши численные оценки приближенны. Однако качественное согласие оценок с различных позиций позволяет надеяться на прогноз класса веществ, с возможностью индуцирования у них при сжатии такого дисперсного состояния, при котором могут наблюдаться описываемые выше эффекты.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 93-013-22334).

## Список литературы

- [1] Фатеев Е.Г. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. В. 10. С. 48–52.
- [2] Bridgman P.W. // Phys. Rev. 1935. V. 48. N 15. P. 825–847.
- [3] Ярославский М.А. Реологический взрыв. М., 1982. 193 с.
- [4] Ярославский М.А. ДАН СССР. 1989. Т. 307. В. 2. С. 369–370.
- [5] Фатеев Е.Г., Хан В.П. // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. В. 20. С. 51–55.
- [6] Хан В.П., Фатеев Е.Г. // Письма в ЖТФ. 1990. Т. 16. В. 8. С. 81–84.
- [7] Ениколопян Н.С., Мхитарян М.С., Карагезян А.А. // ДАН СССР. 1987. Т. 292. В. 4. С. 887–890.
- [8] Фатеев Е.Г., Хан В.П. // ФГВ. 1992. В. 2. С. 70–74.
- [9] Фатеев Е.Г., Полякова И.Г., Хан В.П. // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. В. 20. С. 47–50.
- [10] Clerc J.P., Giraud G., Laugier J.M., Luck J.M. // Adv. Phys. 1991. V. 39. P. 191–308.
- [11] Thompson A.H., Katz A.J., Krohn C.E. // Adv. Phys. 1991. V. 36. P. 626–750.
- [12] Духин С.С., Шилов В.Н. Диэлектрические явления и двойной слой в дисперсных системах и полиэлектролитах. Киев, 1972. 207 с.
- [13] Челидзе Т.Л., Деревянко А.И., Куриленко О.Д. Электрическая спектроскопия гетерогенных систем. Киев, 1977. 232 с.
- [14] Takashima S., Schwan H.P. // J. Phys. Chem. 1965. V. 69. N 12. P. 4176–4182.
- [15] Франц В. Пробой диэлектриков. М., 1961. 155 с.
- [16] Bridgman P.W. // Studies in Large Plastic Flow and Fracture. Ch. 16. Cambridge, Massachysets, 1964. P. 279–292.
- [17] Королев Ю.Д., Месяц Г.А. // Физика импульсного пробоя газов. М., 1991. 224 с.
- [18] Бычков Ю.И., Королев Ю.Д., Курбатов Ю.А., Месяц Г.А. // ЖТФ. 1984. Т. 44. В. 4. С. 791–796.

Институт прикладной механики  
Ижевск

Поступило в Редакцию  
25 июня 1994 г.