

05;09

## О НИЗКОЧАСТОТНОМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ СПЕКТРЕ ПОРОГА ВОЗБУЖДЕНИЯ РЕОЛОГИЧЕСКОГО ВЗРЫВА С ГЛУБОКИМИ ПРОВАЛАМИ

© Е.Г. Фатеев

Институт прикладной механики УрО РАН,  
426001 Ижевск, Россия  
(Поступило в Редакцию 20 января 1995 г.)

Представлено свидетельство существования глубоких провалов в низкочастотном электрическом спектре порога (или критического давления) возбуждения  $P_c(\nu)$  реологического взрыва с другим, кроме кислого оксалата аммония, твердым соединением — кристаллогидратом щавелевой кислоты. Обнаружено, что падению порога  $P_c$  на сверхнизких частотах (СНЧ) в этих соединениях предшествует при давлениях  $P \gtrsim 0.3 \cdot P_c$  кратковременный, но гигантский всплеск диэлектрической проницаемости до  $\epsilon \sim 10^3 - 10^4$ . Предложены две не исключающие друг друга модели, позволяющие понять возможность существования глубоких провалов в электрическом спектре  $P_c(\nu)$  в узкой полосе на СНЧ. Из моделей следует, что провалы на СНЧ и НЧ (условное деление диапазонов) связаны с принципиально разными механизмами диссипации энергии электрического поля: на СНЧ — с селективным по частоте вводом энергии в пробой, на НЧ — с тепловыделениями из-за диэлектрических потерь.

### Введение

Недавно обнаружено явление [1,2], свидетельствующее о возможности значительного влияния переменного электрического поля в низкочастотном диапазоне на порог механической устойчивости  $P_c$  некоторых диэлектриков при их сильном одноосном квазистатическом сжатии. Особенностью этого эффекта является то, что частотный спектр порога устойчивости  $P_c(\nu)$  имеет один узкий глубокий провал в области сверхнизких частот (СНЧ)  $\nu = 10 - 10^3$  Гц и второй более широкий в интервале низких частот (НЧ)  $\nu = 10^3 - 10^6$  Гц. Так, при сильном сжатии в диапазоне давлений  $P \lesssim 3 - 4$  ГПа образцов кислого оксалата аммония (КОА)  $\text{NH}_4\text{HC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$  толщиной  $d \simeq 0.3$  мм в его спектре  $P_c(\nu)$  оказалось два провала вблизи  $\nu_1 \simeq 31$  Гц и около  $\nu_2 \simeq 10^4$  Гц (рис. 1,а). Причем глубина провалов росла в зависимости от амплитуды импульсов напряжения  $U_0$  в соответствии с правилом

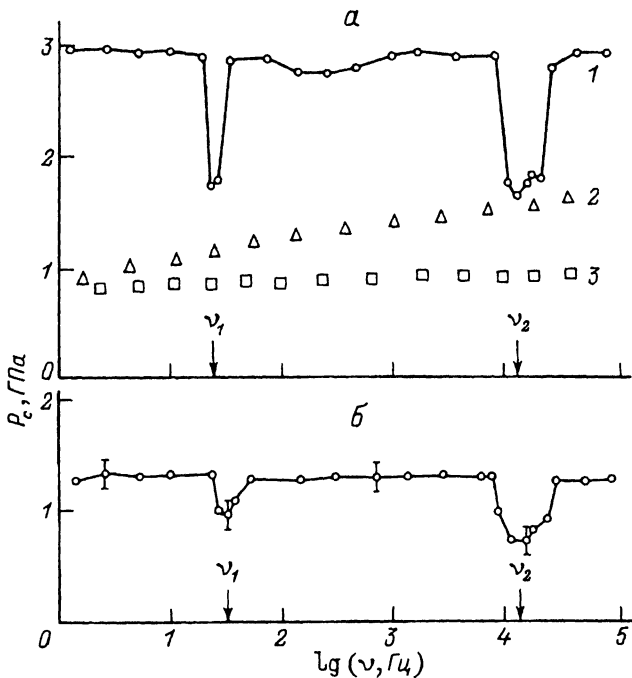


Рис. 1. Низкочастотный электрический спектр порога возбуждения реологического взрыва  $P_c(\nu)$  при амплитуде импульсов напряжения  $U_0 \simeq 65$  В для твердых соединений.

а: 1 —  $\text{NH}_4\text{HC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ , 2 —  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , 3 —  $\text{SC}(\text{NH}_2)_2$ ; спектры из работ [1,2]; б —  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ , спектр найден в данной работе.

$\Delta P(\nu) = P_c(0) - P_c(\nu) \sim U_0^2$  и при  $U_0 \simeq 65$  В порог  $P_c(\nu_1, \nu_2)$  составлял  $\sim 60\%$  от  $P_c(0)$  для  $U_0 = 0$ .

Необходимо подчеркнуть, что описываемое явление наблюдается в условиях, достигаемых в опытах с эффектом, открытым Бриджменом [3] и называемым иногда реологическим взрывом (РВ). РВ проявляется в опытах почти со всеми твердыми диэлектриками и многими полупроводниками и заключается в возбуждении в телах такого состояния неустойчивости при их сильном одноосном статическом ( $dP/dt \lesssim \lesssim 10^{-1}$  ГПа/с) сжатии в области высоких давлений  $P \lesssim 10-15$  ГПа, когда они взрывообразно выбрасываются из-под наковален в микродисперсно разрушенном виде со скоростями  $v \sim 1-2$  км/с [4].

Кратко представим некоторые интересные особенности проявления РВ. Известно [5], что порог  $P_c$  возбуждения РВ (или среднее критическое давление  $P_c$  в теле, при котором в опытах с данным твердым веществом происходит РВ) падает с ростом температуры и скорости статического сжатия. Обнаружена корреляция порога  $P_c$  с термодинамическими параметрами испытываемых веществ [6]. Найдена зависимость порога  $P_c$  от толщины образцов [7]. До возбуждения и особенно в условиях РВ в твердых телах происходят необратимые структурные изменения [8-10] со скачками перколяционных свойств и могут активироваться интенсивные взаимодействия химических реагентов [11,12].

Для дальнейшего особо отметить, что в момент проявления РВ имеет место энергичный импульс электромагнитных излучений в широком спектре вплоть до рентгеновского, а также обнаружена эмиссия электронов [4]. Сообщалось о возможности эмиссии нейтронов в момент РВ с дейтерированными кристаллами [13]. Понятна трудность и неоднозначность суждений о вероятности проявления последнего эффекта [14], особенно если учесть многогранность сопровождающих РВ явлений. Также и в случае с обнаружением немонотонного спектра  $P_c(\nu)$  у КОА более или менее тривиальное объяснение нашлось для НЧ провала вблизи  $\nu_2 \sim 10^4$  Гц, поскольку в соответствующем спектре диссипации энергии электрического поля  $w_e(\nu)$  около  $\nu_2$  наблюдался кратковременный ( $\Delta t \sim 1-5$  с), но достаточный для снижения  $P_c$  всплеск [1]. Существование же СНЧ провала в спектре  $P_c(\nu)$  вблизи  $\nu_1 \sim 31$  Гц в весьма узком интервале  $\Delta\nu_1 \sim 3-5$  Гц кажется странным.

Целью настоящей работы является выяснение природы эффекта СНЧ спадов  $P_c$  и доказательство существования СНЧ и НЧ глубоких провалов в спектрах  $P_c(\nu)$  с другими, кроме КОА, веществами.

### Гигантский СНЧ всплеск диэлектрической проницаемости при сильном сжатии КОА

Не рассматривая пока механизм поляризации диэлектриков с дисперсным строением на низких частотах  $\nu < 10^6$  Гц, отметим возможность всплеска у КОА при неоднородных сжатиях не только диэлектрических потерь  $\text{tg } \delta(\nu)$  на НЧ, но и диэлектрической проницаемости  $\epsilon(\nu)$  на СНЧ [15,16]. Для проверки этого предположения проводился представленный здесь опыт.

В процессе одноосного сжатия КОА со скоростью  $\sim 10^{-1}$  ГПа/с наблюдали за изменением его диэлектрической проницаемости  $\epsilon(P, \nu)$  в области СНЧ. Использовался метод сравнения кинетики затухания электрического потенциала  $U(t)$  после воздействия СНЧ импульсов,

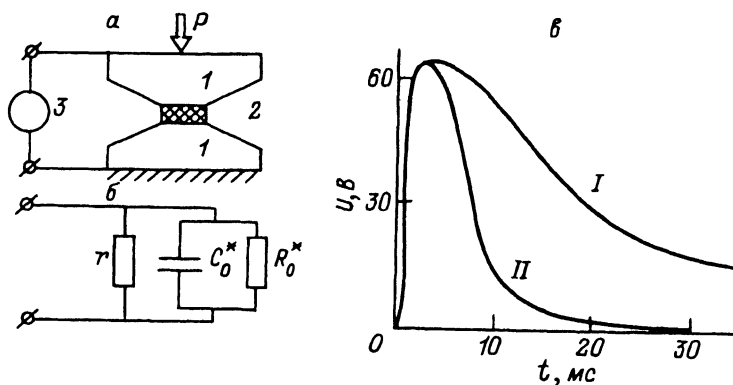


Рис. 2. Система сжатия в переменном поле (а) с соответствующей электрической схемой замещения (б) и характерный вид (в) кинетики затухания потенциала  $U(t)$  на частотах  $\nu_1 \sim 30-50$  Гц в момент гигантского всплеска диэлектрической восприимчивости (I) и обычный (II).

1 — наковальни, 2 — образец, 3 — генератор НЧ импульсов;  $C_0^*$  — эквивалентная емкость с сопротивлением  $R_0^*$ ,  $r$  — сопротивление измерительных цепей.

на обкладках параметрического конденсатора  $C_0(P, \nu)$  (составленно из образца КОА с прижатыми к нему плоскостями наковален) и в соответствующей ему эквивалентной схеме замещения с подбором емкостей  $C_0^*$  и сопротивлений  $R_0^*$  [15]. Вид схемы и обычной кинетики  $U(t)$  на  $C_0$  для СНЧ импульсов длительностью  $\Delta t = 10$  мкс показаны на рис. 2. Релаксационная зависимость  $U(t)$  при подаче на  $C_0$  прямоугольного импульса с амплитудой  $U_0$  описывается соотношением вида

$$U(t) = U_0[\exp(-t/\tau_1) - \exp(-t/\tau_2)], \quad (1)$$

где постоянные времена  $\tau_1 = C_0 R_0 > \tau_2 = C_0 R_0 r / (R_0 + r) \simeq C_0 r$ , поскольку с окончанием импульса заряд стекает и по измерительным цепям с их входным сопротивлением  $r \lesssim 1$  МОм. Подбирая одинаковую форму кинетики затухания  $U(t)$  для  $C_0$  и схемы замещения, определяли  $C_0^*$  и  $R_0^*$ . Далее из равенства  $C_0 R_0 = C_0^* R_0^*$  находили емкость  $C_0$  и соответственно  $\varepsilon = \varepsilon_\infty C_0 / C_\infty$ . При этом принималось во внимание то, что при давлениях  $P < 0.3 P_c$  сопротивление образцов КОА в постоянном поле было  $R_0 \sim 50$  МОм, а при  $P > 0.3 \cdot P_c$  порядка  $R_0 \sim 5$  МОм. И соответственно при  $P < 0.3 \cdot P_c$  для обычных у КОА высокочастотных значений  $\varepsilon_\infty \simeq 10$  с толщиной образца  $d \simeq 3 \cdot 10^{-4}$  м и площадью сечения  $S \simeq 2 \cdot 10^{-5}$  м<sup>2</sup> параметрическая емкость составляла  $C_\infty = \varepsilon_0 \varepsilon_\infty S / d \simeq 10$  пФ. Здесь  $\varepsilon_0 \simeq 10^{-11}$  Ф/м — электрическая постоянная. Паразитные емкости  $C_n \simeq 20$  пФ учитывались в расчетах, если  $C_0$  не превосходила  $C_n$  хотя бы на порядок. Пренебрегались искажения результатов из-за возможных приэлектродных эффектов, поскольку, как известно [16], у диэлектриков с высокими сопротивлениями  $R_0 > 10^5$  Ом их влияние незначительно. Поэтому считалось, что  $R_0$  почти не зависит от низкой частоты.

Наблюдения показали, что в процессе неоднородного сжатия КОА при давлениях  $P > 0.3 \cdot P_c$  имеет место гигантский СНЧ всплеск диэлектрической проницаемости вплоть до  $\varepsilon \sim 10^3 - 10^4$ , показанный на рис. 3. Обратим внимание на то, что СНЧ всплеск  $\varepsilon(\nu)$  проявляется

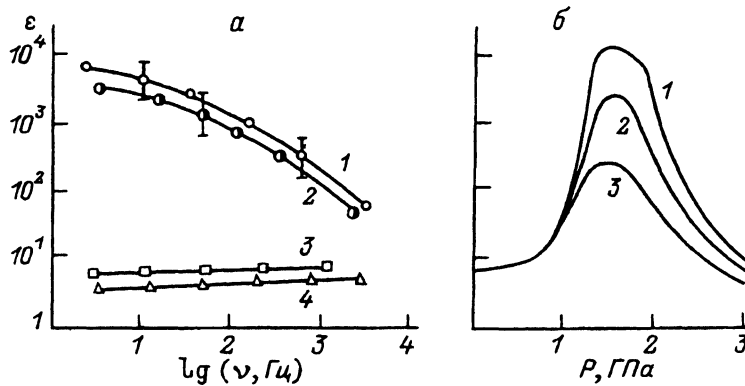


Рис. 3. Низкочастотная дисперсия диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(\nu)$  в момент максимума всплеска (а) для  $\text{NH}_4\text{HC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$  (1),  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  (2),  $\text{SC}(\text{NH}_2)_2$  (3),  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  (4).

И типичный вид (б) всплеска  $\varepsilon(P, \nu)$  в зависимости от степени сжатия КОА со скоростью  $dP/dt \simeq 10^{-1}$  ГПа/с на частотах, Гц: 1 — 10; 2 —  $10^2$ ; 3 —  $10^3$ .

не в виде зависимости с максимумом вблизи  $\nu_1 \sim 31$  Гц, как ожидалось [2], а в форме гигантской дисперсии, монотонно спадающей с ростом частоты. Это обстоятельство вынуждает искать новое представление о механизмах, приводящих к локализации провалов в спектрах  $P_c(\nu)$  в узкой полосе СНЧ.

## Обнаружение провалов в НЧ спектре $P_c(\nu)$ щавелевой кислоты

Гигантский всплеск СНЧ дисперсии  $\varepsilon(\nu)$  у КОА непосредственно перед возбуждением РВ может быть использован как тест для поиска веществ с возможностью существования у них нетривиальных НЧ спектров  $P_c(\nu)$ . Методичный поиск таких соединений привел к обнаружению ряда кристаллогидратов, в том числе и щавелевой кислоты (ШК)  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  с гигантским всплеском  $\varepsilon(\nu)$  на СНЧ (рис. 3). Использование методики нахождения спектра  $P_c(\nu)$ , описанной в [1], действительно привело к обнаружению в опытах со ШК глубоких СНЧ и НЧ провалов  $P_c$ . Поскольку порог  $P_c$  при  $U_0 = 0$  у ШК  $P_c(0) \simeq 1.3$  ГПа, а у КОА  $P_c(0) \simeq 3$  ГПа, то можно сравнить относительные глубины провалов  $\Delta P_r(\nu) = \Delta P(\nu)/P_c(0)$ , где  $\Delta P(\nu) = P_c(0) - P_c(\nu)$ . Видно (рис. 1, б), что на СНЧ  $\Delta P_r(\nu)$  у ШК меньше, чем у КОА. Причем со ШК провал на СНЧ значительно шире и начало спада немного смещено по частоте. Эти отличия тем более интересны, если учесть, что относительная глубина НЧ провалов в спектрах  $P_c(\nu)$  у обоих соединений при амплитуде импульсов напряжения  $U_0 \simeq 65$  В почти одинакова  $\Delta P_r \simeq 0.35$ .

Ранее было показано [2], что в спектрах  $P_c(\nu)$  соединений  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  и  $\text{SC}(\text{NH}_2)_2$  каких-либо особенностей типа провалов  $P_c$  не существует. Исследование поведения диэлектрической восприимчивости при сжатии этих веществ также не привело к обнаружению каких-либо аномальных всплесков  $\varepsilon(\nu)$  (рис. 3, а, кривые 3 и 4). Поэтому связь гигантского всплеска СНЧ дисперсии  $\varepsilon(\nu)$  со снижением порога  $P_c(\nu)$ , хотя бы и не во всем диапазоне СНЧ, приобретает свойство правила. Из опытов следует критерий возможности существования нетривиальных спектров  $P_c(\nu)$  с провалами у веществ с постоянной времени  $\tau_1 = R_0 C_0 \gtrsim 10^{-1}$  с, которую имеют диэлектрики с  $R_0 \gtrsim 1$  МОм и  $C_0 \sim 10^4$  пФ в момент всплеска  $\varepsilon(\nu)$ . Этому критерию не удовлетворяли ни  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , ни  $\text{SC}(\text{NH}_2)_2$ , поскольку у них  $\tau_1 < 10^{-5}$  с при  $R_0 \sim 10^2$  Ом и  $C_0 \sim 20$  пФ у первого, и  $R_0 \sim 1$  МОм и  $C_0 \sim 10$  пФ у второго. Удивление, однако, вызывает значительный рост порога  $P_c$  у  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  с повышением частоты (рис. 1, а, 2).

Таким образом, можно ожидать эффекты с глубокими падениями порога в узких диапазонах СНЧ и НЧ спектра  $P_c(\nu)$  в ряде соединений, содержащих связанную воду. Касаясь же выбора в качестве модельных веществ КОА и ШК, необходимо отметить некоторые методические особенности опытов с РВ. В момент РВ наковальни при выбросе из-под них части образца резко сближаются (за  $\sim 10^{-5}$  с), возбуждая ударную волну с мощностью энерговыделения, коррелирующей с порогом  $P_c$ . При испытаниях веществ с  $P_c \gtrsim 5$  ГПа наковальни выдерживают без разрушений не более 20–30 эффектов с РВ, в то время как для получения полного НЧ спектра  $P_c(\nu)$  необходимо провести

по крайней мере около 400 таких опытов. Поэтому удобны соединения типа КОА и ШК с  $P_c \approx 3$  ГПа, что принципиально важно для получения достоверного спектра  $P_c(\nu)$ .

### Возможная причина гигантского всплеска НЧ диэлектрической дисперсии при одноосном сжатии кристаллогидратов

Гигантский всплеск диэлектрической восприимчивости у соединений, содержащих связанную воду, скорее всего связан с индуцируемыми сжатием процессами дегидратации. Известно [8,9], что перед проявлением РВ в условиях одноосного статического сжатия в любых твердых веществах генерируются сильно неоднородные поля механических напряжений, приводящие к размытым по времени и объему фазовым превращениям. При этом легко активируемые атомы и молекулы мигрируют и скапливаются в пространственной сетке межзеренных областей. Естественно, что в таких диссипативных процессах у КОА или ШК в тонких межзеренных оболочках окажутся легко активируемые молекулы воды. Но именно в таких гетерогенных системах возможна необычно высокая НЧ дисперсия диэлектрической восприимчивости [17]. В переменных полях (в таких дисперсных системах) ионы и катионы, находящиеся в проводящих или полупроводящих оболочках вблизи зерен, перемещаются в пределах каждого включения, которое приобретает индуцированный дипольный момент и ведет себя подобно гигантской поляризованной молекуле. Характерная частота диэлектрического отклика в таких системах определяется из выражения  $\nu \approx 2D/a^2$  и для типичных размеров диссипативных ячеек  $a \sim 10^{-4} - 10^{-6}$  см и коэффициентов диффузии ионов и катионов  $D \sim 10^{-4} - 10^{-6}$  см<sup>2</sup>/с в тонких жидких оболочках оказывается в области  $\nu \approx 10^4 - 10^6$  Гц.

Кратковременность всплеска НЧ диэлектрической дисперсии может быть обусловлена быстрым вытеснением жидкости из тонких оболочек в микрорезервуары или обратными процессами растворения в зернах при дальнейшем сжатии кристаллогидратов до более высоких давлений. О таких процессах с растворением воды даже в кремнийсодержащих соединениях отмечалось в работе [18]. Необычно еще и то, что вязкость воды в тонких оболочках как в нормальных условиях, так и при сильном сжатии до давлений  $P \sim 3$  ГПа может быть одинаковой [19].

Итак, наблюдаемый СНЧ всплеск  $\epsilon(\nu)$  указывает на возможность соответствующих импульсных перенапряжений электрического поля в локальных областях неоднородного диэлектрика. Локальное поле найдем из  $E_l(\nu) = \epsilon(\nu)U/d$ . При обычных в опытах с КОА и ШК значениях  $d \approx 3 \cdot 10^{-2}$  см и  $U_0 \approx 65$  В и максимальных  $\epsilon \sim 10^3 - 10^4$  могут достигаться напряженности поля  $E_l \sim 10^2 - 10^3$  кВ/см, которых в принципе достаточно для пробоя [20]. Однако уникальной особенностью СНЧ провала в спектрах  $P_c(\nu)$  является его локализованность в весьма узком интервале частот  $\nu_1 \sim 30 - 50$  Гц, а не во всех СНЧ, при которых могут иметь место пробойные поля с  $E_l(\nu) \sim 10^3$  кВ/см. И поскольку в пробое может вводиться энергия, соизмеримая с упругой (которая накапливается при сжатии КОА и ШК до  $P_c$ ), т. е. способная привести к снижению  $P_c$ , то попытаемся понять причину СНЧ локализованности спада порога в спектрах  $P_c(\nu)$  вблизи  $\nu_1$ .

Для объяснения СНЧ локализованности провалов в спектрах  $P_c(\nu)$  воспользуемся некоторыми качественными отношениями из теории пробоя конденсированных сред. Так, для длины ветви разряда  $L$  в зависимости от локального электрического поля  $E_l$  и потенциала ионизации  $I$  диэлектрика с высокой проницаемостью найдена связь типа [21]

$$L_n \sim I^{-\lambda} E_l^k, \quad (2)$$

где  $\lambda = 1 - 3$  и  $k = 2 - 3$ .

Развитие фрактальной модели разряда привело в принципе к подобной корреляции [22,23], но с отсечкой допороговых полей  $E_l < E_c$ , при которых прорастания ветвей нет. Естественно связать длину ветви  $L$ , коррелирующую с числом ионизованных структурных единиц (по пути следования ветви разряда), с энергией  $W_n$ , необратимо вводимой в нее, тогда (2) следует переписать в виде

$$L_n(\nu) \sim W_n(\nu) \sim I^{-\lambda} \varepsilon(\nu) E_l^k(\nu). \quad (3)$$

Учтем также, что и скорость прорастания перколяционного кластера зависит от количества импульсов с  $E_l > E_c$ . Для модельной решетки, например, в работе [24] был показан рост усредненного числа ветвей  $N$  единичной длины  $L$  после подачи  $n$  импульсов, подобный  $N(n) \sim \exp(\gamma n)$  с  $\gamma \simeq 0.85$ . Поскольку в нашем случае кратковременность всплеска ( $\Delta t < 5$  с) дисперсии  $\varepsilon(\nu)$  накладывает ограничение на количество импульсов  $n$ , то число вырастающих ветвей пробоя можно выразить через частоту

$$N(\nu) \sim \exp(\gamma \Delta t \nu). \quad (4)$$

Тогда всю плотность энергии (в расчете на единицу объема сжимаемого тела  $V$ ), вводимую во фрактально ветвящуюся конфигурацию пробоя за время  $\Delta t$ , можно выразить в виде частотного спектра

$$w_e(\nu) \sim N(\nu) W_n(\nu) V^{-1}. \quad (5)$$

В то же время наблюдаемую гигантскую дисперсию  $\varepsilon(\nu)$  формально можно описать уравнением Дебая [16,17]

$$\varepsilon(\nu) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)(1 + \nu^2 \tau^2)^{-1}, \quad (6)$$

где время релаксации связанных зарядов в оболочках  $\tau = a^2/2D$ ,  $\varepsilon_s$  и  $\varepsilon_\infty$  — максимальное СНЧ и минимальное высокочастотное значения диэлектрической проницаемости,  $a$  — размер дисперсных частиц,  $D$  — коэффициент диффузии ионов в жидких оболочках.

Надо полагать, что  $D$  должен сильно расти с температурой  $D \sim D_0 \exp(T - T_0)$  и значительно падать с ростом давления  $D \sim D_0 \exp(P_0 - P)$ , однако в случае с оболочками с водой влияние сжатия на подвижность ионов в ней может быть нетривиальным [18,19]. Более точное и неформальное, но весьма громоздкое выражение для НЧ

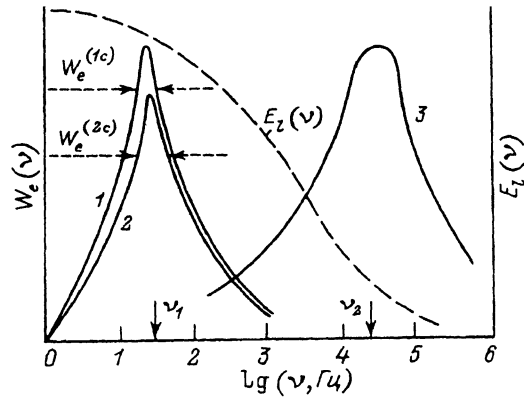


Рис. 4. Качественный вид частотных спектров для плотности электрической энергии  $w_e(\nu)$ , способной вводиться в разряд, и напряженности поля  $E_1(\nu) \sim \epsilon(\nu)$  в момент гигантского всплеска  $\epsilon$  в модели с перколяционным прорастанием пробоя.

На пороговых уровнях  $w_e^{(1c)} > w_e^{(2c)}$  у кривых 1 и 2 с  $\gamma_1 > \gamma_2$ , подразумеваемых для КОА и ШК, соотношение ширины пиков  $\Delta\nu_{1c} < \Delta\nu_{2c}$ ; 3 — спектр плотности энерговыделения  $w_e(\nu) \sim \text{tg } \delta(\nu)$  в максимуме всплеска диэлектрических потерь  $\text{tg } \delta(\nu)$  при сжатии КОА, обнаруженном в работе [1].

дисперсии  $\epsilon(\nu)$  без привлечения  $\epsilon_s$  и  $\epsilon_\infty$  предложено недавно в работе [25]. Его было бы полезно использовать для оценки смещения дисперсии по частоте в зависимости от размера частиц, доли жидкой фазы в дисперсной системе и концентрации ионов в оболочках.

Преобразуя (5) с учетом (6), найдем спектр плотности энергии

$$w_e(\nu) \sim I^{-\lambda} V^{-1} \left( \frac{U}{d} \right)^k \epsilon^{k+1}(\nu) \exp(\gamma \Delta t \nu), \quad (7)$$

из которого становится очевидной возможность локализованного на СНЧ ввода электрической энергии в перколяционно растущий пробой. При построении кривой, отвечающей СНЧ спектру  $w_e(\nu)$ , можно не учитывать отсечку  $E_l < E_c$ , поскольку из-за корреляций  $w_e(\nu) \sim \epsilon^{k+1}(\nu)$  и  $E(\nu) \sim \epsilon(\nu)$  острый максимум будет локализован при  $E_l > E_c$ , как это схематично показано на рис. 4.

Максимально возможную плотность энергии, вводимую в пробой, можно оценить из формулы  $w = \epsilon_0 \epsilon E^2 / 2$ . При  $\nu \simeq 31$  Гц и  $\Delta t \simeq 1$  с можно ожидать порядка  $n \sim 10$  импульсов, и если их энергия хотя бы на 10% истратится на прорастание ветвей, то при  $\epsilon \sim 10^3 - 10^4$  и соответственно  $E \sim 10^3$  кВ/см в СНЧ всплеске  $\epsilon(\nu)$  для всей конфигурации пробоя окажется не менее  $w_e \sim 10^3$  Дж/см<sup>3</sup>. Это значение соотносится с порядком плотности упругой энергии  $w_s \sim 10^3$  Дж/см<sup>3</sup>, накапливаемой в дискообразном образце КОА или ШК при сжатии до  $P_c \sim 2-3$  ГПа. Ее можно оценить, например, из кинетической энергии  $Q = mv^2/2$ , уносимой из зоны сжатия осколками массой  $m \simeq 10^{-2}$  г и объемом  $V \simeq 5 \cdot 10^{-3}$  см<sup>3</sup> со скоростью  $v \sim 10^6$  см/с.

Соразмерность  $w_e$  и  $w_s$  позволяет представить дисперсию  $P_c(\nu)$ , коррелирующую с наблюдаемым вкладом  $w_s(\nu)$  и соответствующей  $w_s(0)$  без воздействия полей  $E = 0$ , в зависимости от  $w_e(\nu)$  в виде

$$P_c(\nu) \sim w_s(\nu) = w_s(0) - w_e(\nu). \quad (8)$$

Придавая коэффициенту  $\gamma$  в (7) физический смысл, связанный с эффективностью ионизации в диэлектриках, заметим следующее. В КОА



в отличие от ШК существует не менее двух легко ионизируемых группировок типа  $H_2O$  и  $NH_4$ , из-за чего расширяется спектр энергий электронов, способных неупруго взаимодействовать с этим диэлектриком. Иначе, в каждом импульсе поля электроны, инжектируемые с накоплен, пробьют более длинную ветвь в КОА, чем в ШК. Поэтому для ШК можно ожидать в соответствии с выражением (7) менее высокий СНЧ максимум в спектре  $w_e(\nu)$ . Однако из-за более низкой пороговой плотности энергии  $w_e^{(c)}(\nu)$ , способной еще повлиять на порог возбуждения РВ у ШК с его  $P_c(0) \simeq 1.3$  ГПа, соответствующие СНЧ максимуму в  $w_e(\nu)$  провалы в спектре  $P_c(\nu)$  могут оказаться заметно шире для ШК, чем для КОА, как это наблюдалось в экспериментах (рис. 4 и 1, а, б).

Таким образом, СНЧ провал в спектре  $P_c(\nu)$  может быть связан с процессами СНЧ селективного прорастания пробоя, однако при одноосных сжатиях диэлектриков подобных КОА не исключены пробои в значительно меньших полях  $E \lesssim 10-10^2$  кВ/см, кроме этого, не требующие аккумуляции энергии нескольких импульсов. Рассмотрим и этот случай.

### Модель СНЧ провала с пробоем газа в микротрещине

Основную роль в таких пробоях должны играть микротрещины, обычно образующиеся в моменты локальных срывов механических напряжений в предкритических условиях  $P \sim (0.5-0.7) \cdot P_c$  сильного одноосного сжатия диэлектриков. Между берегами в зоне быстрого роста микротрещин с поверхности скола, как и в любых других видах разрушений, инжектируются заряженные частицы и жесткие кванты [26]. По оценкам [4] за время раскрытия трещин  $\Delta t \sim 10^{-5}-10^{-7}$  с в зазоре сечением  $S_d \sim 10^{-4}-10^{-6}$  см<sup>2</sup> может оказаться порядка  $n_0 \sim 10^{13}$  см<sup>-3</sup> электронов с широким спектром энергий вплоть до  $q \sim 100$  кэВ и с максимумом дисперсии при  $q \sim 10-200$  эВ. Но именно при таких энергиях электроны имеют наибольшую вероятность неупругого взаимодействия с двухатомными молекулами, т. е. способны эффективно их ионизовать [27, 28]. И в случае прорастания трещины на всю толщину образца  $d$  в зазоре между ее берегами возможно зажигание самостоятельного разряда в ионизованном газе. Газовые молекулы  $H_2O$ ,  $NH_4$ ,  $CO_2$ ,  $CO$  и отдельные атомы могут быть "впрыснуты" в зазор из сильно сжатых и вскрытых на берегах трещин жидких прослоек или выбиты энергичными электронами. Столб такого разряда может быстро диссипировать СНЧ импульсный всплеск энергии поля в параметрическом конденсаторе  $C_0$ , что может выразиться в возбуждении ударной волны, способной значительно снизить порог инициирования РВ.

Особенностью такого разряда является то, что с ростом энергии, вводимой в него, увеличивается вероятность искрового пробоя в зазоре, из-за которого на порядки падает доля энергии эффективно диссипируемая в газоразрядной плазме [28]. Учитывая это обстоятельство, оценим эффективную плотность энергии  $w_e$ , вводимую с пробой газа, в столбе высотой  $d$  и сечением  $S_d$  из следующего выражения [29]:

$$w_e = \frac{C_0 E_0^2}{2} \frac{d}{S_d} \left[ 1 - \exp \left( -\frac{2t_0}{R_{pl} C_0} \right) \right], \quad (9)$$

где спонтанное плазменное сопротивление  $R_{pl} = \beta d(e\mu S_d)^{-1}(\psi\beta)^{-1/2}$  и напряженность поля в столбе разряда  $E_0$  выражаются через импульс поля  $E$  во всем параметрическом конденсаторе  $C_0$

$$E_0 = E(1 + \beta n_0 t_0)^{A/C_0}, \quad A = e\mu S_d(\beta d)^{-1}, \quad n_0 = (\psi/\beta)^{1/2}.$$

Здесь  $n_0$  — стационарная концентрация заряженных частиц на промежутке  $t_0 \sim 10^{-5} - 10^{-7}$  с,  $\mu$  — их подвижность,  $e$  — заряд,  $\psi$  — скорость ионизации молекул газа,  $\beta$  — их коэффициент рекомбинации. При этом  $\psi$  зависит от вероятности взаимодействия электронов с различными молекулами газа  $f_i(q)$  и их порциальных плотностей  $\rho_i$  в виде  $\psi \sim \sum_i f_i(q)\rho_i$  [28].

Подставляя в (9) выраженные через  $\varepsilon(\nu)$  значения  $E = \varepsilon(\nu)U/d$  и  $C_0 = \varepsilon(\nu)\varepsilon_0 S/d$  и принимая во внимание гигантский всплеск СНЧ дисперсии  $\varepsilon(\nu)$ , описываемой формулой (6), найдем следующую частотную зависимость для эффективной плотности энергии, вводимой в плазменный пробой:

$$w_e(\nu) = \varepsilon^3(\nu)\varepsilon_0 \frac{S}{2S_d} \left(\frac{U}{d}\right)^2 \left[1 - \exp\left(-\frac{2t_0 n_0 e\mu S_d}{\varepsilon(\nu)\varepsilon_0 S}\right)\right] (1 + \beta n_0 t_0)^{2A/C_0}. \quad (10)$$

При обычных параметрах, характерных для разреженных газов типа  $\text{H}_2\text{O}^+$  и  $\text{NH}_4^+$  [28,30],  $\mu \sim 10^3 \text{ см}^2/(\text{с}\cdot\text{В})$ ,  $\beta \sim 10^{-7} \text{ см}^3/\text{с}$ ,  $t_0 \sim 10^{-6} - 10^{-7}$  с,  $n_0 \sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$  для значений  $U \simeq 65 \text{ В}$ ,  $d \simeq 3 \cdot 10^{-2} \text{ см}$ ,  $S \simeq 2 \cdot 10^{-1} \text{ см}^2$  и ожидаемой величины  $S_d \sim 10^{-3} - 10^{-5} \text{ см}^2$  в момент всплеска  $\varepsilon \sim 10^3 - 10^4$  в спектре  $w_e(\nu)$  существует СНЧ максимум, схематично показанный на рис. 5. Величина  $w_e$  в максимуме селективного СНЧ ввода энергии в пробой газа может оказаться на уровне  $w_e \sim 10^3 - 10^4 \text{ Дж}/\text{см}^3$ , что соизмеримо с плотностью упругой энергии  $w_s$ , накапливаемой в образцах КОА или ШК при их сильном сжатии. Поэтому и в этой модели СНЧ зависимость  $P_c(\nu)$  с глубокими провалами у КОА и ШК вблизи  $\nu_1$  может являться отражением спектра  $w_e(\nu)$  с максимумами на СНЧ в соответствии с корреляционным отношением (8).

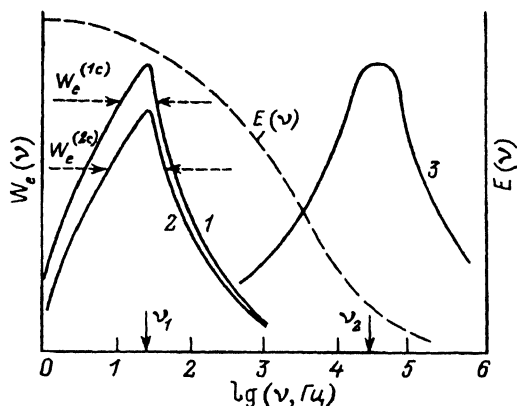


Рис. 5. То же, что на рис. 4, для модели с пробоем газа в микротрещине. 1, 2 — скорости ионизации газа  $\psi_1 > \psi_2$  в КОА и ШК.

В том, что СНЧ спектры  $P_c(\nu)$  для КОА и ШК различаются, в данной модели значительную роль будут играть процессы ионизации газообразных молекул в столбе разряда. Можно ожидать, как и в модели с перколяционным прорастанием пробоя, больших скоростей ионизации  $\psi$  у КОА, чем у ШК, поскольку увеличение типов молекул в газе также приведет к расширению спектра энергий электронов, способных эффективно взаимодействовать с таким газом. Поэтому для ШК максимум селективного СНЧ ввода энергии окажется в соответствии с отношением (10) менее высокий. Однако из-за более низкой пороговой плотности энергии  $w_e^{(c)}$ , способной еще существенно повлиять на порог  $P_c$  у ШК, соответствующие максимуму в  $w_e(\nu)$  провалы в спектре  $P_c(\nu)$  окажутся шире для ШК, чем для КОА (рис. 1 и 5).

### Обсуждение результатов и заключение

В модели с пробоем газа в микротрещине можно исключить процессы, связанные с накоплением электрической энергии нескольких СНЧ импульсов, поскольку концентрация заряженных частиц  $n_0$  в зазоре поддерживается на достаточном для зажигания разряда уровне в промежутке  $\Delta t \lesssim 10^{-6}$  с, гораздо меньшем, чем период следования импульсов  $T > 10^{-2}$  с. В этом заключается основное различие двух предложенных здесь моделей. Что же касается их возможной связи, то представляется вполне вероятным на каком-то этапе прорастания ветвей более раннее раскрытие микротрещины вблизи области с перколяционно растущим пробоем. И наоборот, несковозное раскрытие микротрещины может привести к ускоренному вблизи нее росту ветвей пробоя.

Можно предположить, что описываемые здесь СНЧ провалы в спектрах  $P_c(\nu)$  могут наблюдаться не только в дегидратирующихся при сжатии соединениях, но и в веществах, испытывающих какие-либо другие фазовые превращения, если при этом у них имеется гигантский СНЧ всплеск диэлектрической восприимчивости. Однако если относить такую возможность к некоторым сегнетоэлектрикам с высокой  $\epsilon \lesssim 10^3$ , то необходимо отметить, что при давлениях порядка  $P \sim 0.5$  ГПа обычно происходит демпфирование колебательных движений доменов [31]. В связи с этим уместно заметить, что и КОА при  $T_c \lesssim 146$  К находится в сегнетосостоянии [32]. Однако всплеск дисперсии  $\epsilon(\nu)$  в СНЧ диапазоне проявился у КОА при  $T_0 \simeq 293$  К и средних давлениях  $P \gtrsim 1$  ГПа, когда переориентации доменов демпфированы. Отметим еще, что если  $T_c$  вырастет при сжатии до  $T_0$ , что в принципе возможно [33], то все равно у КОА даже вблизи  $T_c$  максимум в дисперсии  $\epsilon(\nu)$  при  $\nu \lesssim 10^3$  не превышает  $\epsilon \simeq 15-20$  [32]. Естественно, остается возможность гигантского роста  $\epsilon(\nu)$  на НЧ из-за таких диссипативных процессов, индуцируемых неоднородными полями механических напряжений при сильном одноосном сжатии, когда сложные соединения приобретают дисперсное строение с диэлектрическими включениями с тонкими жидкими или квазижидкими оболочками или прослойками.

В соответствии с отношениями (8), (7) и (10) глубина СНЧ провалов  $\Delta P(\nu) = P_c(0) - P_c(\nu)$  должна коррелировать с амплитудой импульсного напряжения  $U_0$  согласно правилу  $\Delta P(\nu, U_0) \sim U_0^2$ , что и бы-

ло показано в экспериментах [1] вплоть до  $U_0^* \simeq 65$  В, в том числе и для НЧ спада. Неизвестно, однако, выполняется ли это правило при  $U_0 > U_0^*$ . Можно предположить, что при высоких напряжениях  $U_0$  глубина  $\Delta P$  даже снизится. Это может произойти в соответствии с (7) или (10), если электроны в ускоряющем поле станут более энергичными и таким образом менее эффективными при ионизации газовых или конденсированных молекулярных группировок типа  $\text{H}_2\text{O}$  и  $\text{NH}_4$ .

Контрастность формы СНЧ провалов в спектрах  $P_c(\nu)$  можно ожидать вплоть до таких амплитуд  $U_0 < U_{\max}$ , при которых начнутся эффекты пробоя в интервале давлений  $P < 0.1$  ГПа еще до возникновения СНЧ всплеска  $\epsilon(\nu)$ . Для КОА и ШК, например, до гигантского СНЧ роста  $\epsilon(\nu)$  при  $\epsilon \simeq 10-20$  в пробойных полях  $E \simeq 10^3$  кВ/см и толщинах образцов  $d \simeq 3 \cdot 10^{-2}$  см получим значение  $U_{\max} = Ed/\epsilon \sim 1000$  В. Таким образом, описываемые эффекты с СНЧ провалами в спектрах  $P_c(\nu)$  можно наблюдать в достаточно широком диапазоне импульсных напряжений  $0 < U_0 < 1$  кВ.

Пока в экспериментах не удается зафиксировать сам факт СНЧ селективного пробоя, поскольку вслед за ним моментально происходит эффект РВ, времена релаксации которого порядка  $\sim 10^{-5}-10^{-7}$  с. Однако совпадение характера аргументации в той и другой модели, касающейся величины и формы максимумов в дисперсии  $w_e(\nu)$  и соответствующих провалов в спектрах  $P_c(\nu)$ , как для КОА, так и для ШК, неслучайно и может свидетельствовать о существенной роли процессов ионизации в механизмах инициирования СНЧ локализованных спадов порога  $P_c$ , что естественно связывается с пробоем.

Подводя итог, сделаем следующие основные выводы. Воздействие переменным электрическим полем в низкочастотном диапазоне на сильно одноосно сжимаемые диэлектрики, содержащие связанную воду, приводит к значительному снижению у них порога механической устойчивости  $P_c$ . Причем наибольшее падение  $P_c$  проявляется в двух достаточно узких частотных интервалах вблизи  $\nu_1 \sim 30-50$  Гц и около  $\nu_2 \sim 10^4$  Гц. Показано, что оба провала порога  $P_c$  являются следствием гигантского всплеска низкочастотной диэлектрической дисперсии, индуцированного в кристаллогидратах (подобных кислуму оксалату аммония и щавелевой кислоте) в процессе одноосного статического сжатия в области высоких давлений  $P \sim (0.3-0.7) \cdot P_c$ . При этом, как следует из [1,2], падение порога вблизи  $\nu_2$  вызывается кратковременной диссипацией энергии электрического поля в виде диэлектрических потерь. Падение же порога  $P_c$  около  $\nu_1$ , как показывается в данной работе, вызвано селективным по частоте вводом электрической энергии в пробой, являющийся следствием гигантского СНЧ всплеска диэлектрической проницаемости. Таким образом, глубокие провалы в низкочастотных спектрах  $P_c(\nu)$  вблизи  $\nu_1$  и около  $\nu_2$  для указанных выше диэлектриков могут быть связаны с принципиально разными механизмами диссипации энергии электрического поля.

Автор благодарит В.П. Скуба за помощь в проведении экспериментов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 93-01-22334, 95-05-14488).

- [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] *Bridgman P.W.* // Phys. Rev. 1935. Vol. 48. N 15. P. 825–847.
- [4] *Ярославский М.А.* Реологический взрыв. М.: Наука, 1982. 193 с.
- [5] *Фатеев Е.Г., Хан В.П.* // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. Вып. 20. С. 51–55.
- [6] *Хан В.П., Фатеев Е.Г.* // Письма в ЖТФ. 1990. Т. 16. Вып. 8. С. 81–84.
- [7] *Ениколопян Н.С., Мхитарян М.С., Карагезян А.А.* и др. // ДАН СССР. 1987. Т. 292. № 4. С. 887–890.
- [8] *Фатеев Е.Г., Хан В.П.* // ФГВ. 1992. Вып. 2. С. 70–74.
- [9] *Фатеев Е.Г., Полякова И.Г., Хан В.П.* // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. Вып. 20. С. 47–50.
- [10] *Александров А.И., Гаспарян Э.Э., Свистунов В.С.* и др. // ДАН СССР. 1990. Т. 314. № 3. С. 648–650.
- [11] *Ениколопян Н.С., Гаспарян Э.Э., Хзарджян А.А.* // ДАН СССР. 1987. Т. 294. № 5. С. 1151–1154.
- [12] *Ениколопян Н.С.* // ДАН СССР. 1988. Т. 302. № 3. С. 630–634.
- [13] *Ярославский М.А.* // ДАН СССР. 1989. Т. 307. № 2. С. 369–370.
- [14] *Федорович Г.В.* // ЖТФ. 1993. Т. 63. Вып. 10. С. 64–74.
- [15] *Gemert M.J.* // J. Chem. Phys. 1974. Vol. 60. N 10. P. 3963–3974.
- [16] *Челидзе Т.Л., Дервянко А.И., Куриленко О.Д.* Электрическая спектроскопия гетерогенных систем. Киев: Наукова думка, 1977. 232 с.
- [17] *Дутин С.С., Шилов В.Н.* Диэлектрические явления и двойной слой в дисперсных системах и полиэлектrolитах. Киев: Наукова думка, 1972. 207 с.
- [18] *Blacic J.D.* // Geophys. Res. Lett. 1981. Vol. 8. P. 703–706.
- [19] *Poirier J.P.* Creep of Crystals. Cambridge University Press, 1985. 286 p.
- [20] *Франц В.* Пробой диэлектриков. М.: ИЛ, 1961. 155 с.
- [21] *Tewordt L.* // Zs. Phys. 1954. Vol. 138. P. 499–503.
- [22] *Niemeyer L., Petronero L., Wiesman H.J.* // Phys. Rev. Lett. 1984. Vol. 52. P. 1033–1036.
- [23] *Wiesman H.J., Zeller H.R.* // J. Appl. Phys. 1986. Vol. 60. P. 1770–1773.
- [24] *Takayasi H.* // Phys. Rev. Lett. 1985. Vol. 54. P. 1099–2001.
- [25] *Барковская Ю.В., Шилов В.Н.* // Коллоид журн. 1992. Т. 54. Вып. 2. С. 43–50.
- [26] *Дерягин Б.В., Кротова Н.А., Смилга В.П.* Адгезия твердых тел. М.: Наука, 1973. 286 с.
- [27] *Мик Д., Крэгс Д.* Электрический пробой в газах. М.: ИЛ, 1960. 600 с.
- [28] *Королев Ю.Д., Месяц Г.А.* Физика импульсного пробоя газов. М.: Наука, 1991. 224 с.
- [29] *Бычков Ю.И., Генкин С.А., Королев Ю.Д.* и др. // ЖЭТФ. 1974. Т. 66. Вып. 2. С. 622–625.
- [30] *Леше Л.* Физика молекул. М.: Мир, 1987. 232 с.
- [31] Физика сегнетоэлектрических явлений / Под ред. Г.А. Смоленского. Л.: Наука, 1985. 396 с.
- [32] *Fukai M., Matsuo T.* // J. Phys. Chem. Solids. 1989. Vol. 50. P. 743–751.
- [33] *Krauzman M., Godet L.* // Europhys. Lett. 1988. Vol. 6. N 1. P. 37–42.