Журнал технической физики, 1998, том 68, № 5

01;05

Генерация гармоник в микронеоднородных композитах

© М.А. Сатанин, А.А. Снарский, К.В. Сличенко, И.В. Безсуднов

Национальный технический университет,
252056 Киев, Украина

(Поступило в Редакцию 3 апреля 1997 г.)

Изучается влияние микроструктуры слабо нелинейных композитов на нелинейный отклик. Амплитуда третьей гармоники выражена через четвертый момент тока и локальное значение тензора нелинейной восприимчивости композита. Исследована общая структура эффективного тензора восприимчивости. Обсуждается возможность экспериментального измерения его компонентов.

Изучение нелинейных эффектов в композитах позволяет получать важную информацию о микроструктуре материалов [1]. В работах [2,3] отмечалось неуниверсальность нелинейного поведения систем в критической области и чувствительность критических индексов к микрогеометрии случайной среды. В последнее время была обнаружена глубокая связь между нелинейной проводимостью, коэффициентом $-1/f$ шума и генерацией третьей гармоники [3–8] в слабонелинейных средах. Как оказалось, эти величины могут быть выражены через корреляторы электрического поля $\langle e^4\rangle$ и тока $\langle j^4\rangle$. Исследование поведения высших моментов и их расходимостей позволяет получать дополнительную информацию о структуре композитов [9]. Наиболее удобным методом изучения нелинейных свойств являются возбуждение и измерение третьей гармоники. В настоящее время известно выражение для амплитуды третьей гармоники только для локально-изотропной случайной среды [3,8].

В данной работе получено общее выражение для амплитуды третьей гармоники с учетом локальной микроструктуры композита. Исследована структура эффективного тензора нелинейной восприимчивости. Обсуждаются возможности экспериментального измерения его компонент и получения дополнительной информации о микрогеометрии системы.

Предварительно обсудим модель локально-анизотропной среды. В качестве примера будем иметь в виду композит, состоящий из микрочастиц углерода, растворенного в полимере. В такой системе кристаллографические оси поликристаллов ориентированы случайным образом. Известны также многочисленные примеры реализации текстурированных пленок и объемных образцов, у которых составляющие их микрокомпоненты имеют преимущественную ориентацию осей [1]. Будем интересоваться нелинейными эффектами в таком веществе, в частности генерацией гармоник. В линейном приближении поле и ток связаны соотношением

$$e_\alpha = \rho_{\alpha\beta} j_\beta, \tag{1}$$

где $\rho_{\alpha\beta}$ — локальный тензор сопротивления композита.

Там, где это не оговорено, по повторяющимся индексам будет вестись суммирование. Значения компонент тензора $\rho_{\alpha\beta}$ (лабораторная система координат) можно выразить через соответствующие компоненты в подвижной системе координат $\rho_{\alpha\beta} = u_{\alpha\gamma}\rho^0_{\gamma\delta}u_{\delta\beta}$, $u_{\alpha\gamma}$ — матрица поворота. Тот или иной тип текстуры будем моделировать путем выбора соответствующей функции распределения углов, определяющих матрицу поворота $u_{\alpha\gamma}$.

Ток и поле подчиняются уравнениям

$$\operatorname{div}\mathbf{j} = 0, \qquad \operatorname{rot}\mathbf{e} = 0. \tag{2}$$

Электрическое поле и ток случайным образом меняются от точки к точке внутри композита. Введем средние по объему системы и по ориентации микрокристаллитов

$$\mathbf{E} = \langle\mathbf{e}\rangle, \quad \mathbf{J} = \langle\mathbf{j}\rangle. \tag{3}$$

Эффективное сопротивление для макроскопической системы является изотропным тензором $\rho^e_{\alpha\beta} = \rho^e\delta_{\alpha\beta}$. Величина ρ^e определяется соотношением

$$\mathbf{E} = \rho^e\mathbf{J} \tag{4}$$

или энергетическим соотношением

$$\rho^e\mathbf{J}^2 = \langle\rho_{\alpha\beta} j_\alpha j_\beta\rangle. \tag{5}$$

Для макроскопических систем эти определения эквивалентны.

Теперь обсудим кратко, как можно описать нелинейный композит. Физические механизмы нелинейности существенно зависят от материала микрокристаллитов. Если микрокристаллиты представляют собой металл или сильно легированный полупроводник, то можно воспользоваться приближением электронной температуры. Если же микрокристаллиты представляют собой широкозонный диэлектрик или слабо легированный полупроводник, то следует принять во внимание активационный механизм зависимости тока от поля в этих микроструктурах.

В данной работе мы ограничимся приближением слабой нелинейности. В этом случае каждая из указанных выше моделей сводится к учету кубического члена в разложении

$$e_\alpha = \rho_{\alpha\beta} j_\beta + k_{\alpha\beta\gamma\delta} j_\beta j_\delta, \tag{6}$$

где $k_{\alpha\beta\gamma\delta}$ — локальный тензор нелинейного сопротивления.

Число компонент тензора зависит от пространственной симметрии микрокристалла. Нетрудно подсчитать, что для тетрагональной сингонии их 10, для кубической может быть 4, а для гексагональной — 11.

Пусть образец включен во внешнюю цепь так, что компоненты среднего тока меняются по закону $J_\alpha = J_\alpha^0 \cos(\omega_\alpha t)$ (здесь суммирования по α нет). Локальные токи в зависимости от времени будут также меняться по гармоническому закону $j_\alpha = j_\alpha^0 \cos(\omega_\alpha t)$ (здесь также нет суммирования по α). Получим связь между локальным изменением температуры вследствие нагрева электронного газа и локальным тензором нелинейного сопротивления. При этом мы обобщим выражение для нелинейного отклика, полученного в [8] для локально изотропной среды. Составляя уравнение баланса, получим

$$\delta T = \frac{1}{\Lambda}\rho_{\alpha\beta} j_\alpha j_\beta, \tag{7}$$

где Λ — коэффициент теплопередачи от электронов в решетку.

Локальное изменение сопротивления при локальном изменении температуры

$$\delta\rho_{\alpha\beta} = \frac{\partial\rho_{\alpha\beta}}{\partial T}\,\delta T$$

можно записать в виде

$$\delta\rho_{\alpha\beta} = h\,\frac{\partial\rho_{\alpha\beta}}{\partial T}\,\rho_{\gamma\delta} j_\gamma j_\delta, \tag{8}$$

$h = 1/\Lambda$.

С другой стороны, из (1) следует, что

$$e_\alpha = \left(\rho_{\alpha\beta} + \delta\rho_{\alpha\beta}\right) j_\beta. \tag{9}$$

Подставляя (8) в (9) и сопоставляя с (6), находим

$$k_{\alpha\beta\gamma\delta} = h\,\frac{\partial\rho_{\alpha\beta}}{\partial T}\,\rho_{\gamma\delta}. \tag{10}$$

Следует отметить, что нелинейное слагаемое в (6) может иметь более общий смысл, чем выражение (10), полученное в рамках температурной модели. Таким образом, локальное изменение сопротивления для локально анизотропной среды можно записать в виде

$$\delta\rho_{\alpha\beta} = k_{\alpha\beta\gamma\delta} j_\gamma j_\delta. \tag{11}$$

Используя теорему Коэна [10], запишем вариацию эффективного сопротивления

$$\delta\rho^e \mathbf{J}^2 = \left\langle \delta\rho_{\gamma\delta} j_\gamma j_\delta \right\rangle. \tag{12}$$

После подстановки (11) в (12) получаем

$$\delta\rho^e \mathbf{J}^2 = \left\langle k_{\alpha\beta\gamma\delta} j_\alpha j_\beta j_\gamma j_\delta \right\rangle. \tag{13}$$

Используя (13) и

$$E_\nu = \left(\rho^e + \delta\rho^e\right) J_\nu, \tag{14}$$

можно записать поправку к полю, обусловленную слабой нелинейностью среды

$$\delta E_\nu = \left(\left\langle k_{\alpha\beta\gamma\delta} j_\alpha j_\beta j_\gamma j_\delta \right\rangle / \mathbf{J}^4\right) \mathbf{J}^2 J_\nu. \tag{15}$$

Как уже отмечалось выше, подобное соотношение имеет место не только для температурной модели. Оно справедливо также и в тех случаях, когда нелинейность имеет другое происхождение. Например, нелинейность может быть обусловлена зависимостью сечения рассеяния электронов от электрического поля, влиянием силы Лоренца на траекторию носителей и т. д.

В локально-изотропном случае, когда

$$k_{\alpha\beta\gamma\delta} = k_s \delta_{\alpha\beta}\delta_{\gamma\delta} \tag{16}$$

и внешний ток и локальные токи меняются по гармоническому закону, (15) позволяет записать амплитуду третьей гармоники в виде

$$B_{3\omega} = \left\langle k_s (j^0)^4 \right\rangle / \langle j^0 \rangle^4 \tag{17}$$

Выражение (17) совпадает с результатом работы [8].

Как видно из (15), в первом приближении по нелинейности функция отклика определяется коррелятором вида

$$K = \left\langle k_{\alpha\beta\gamma\delta} j_\alpha j_\beta j_\gamma j_\delta \right\rangle / \mathbf{J}^4. \tag{18}$$

После усреднения по положению и ориентации микрокристаллитов, (18) записывается в виде

$$K = k^e_{\alpha\beta\gamma\delta} n_\alpha n_\beta n_\gamma n_\delta, \tag{19}$$

где n — единичный вектор, зависящий от направления среднего тока и времени $n = \langle j \rangle / |\langle j \rangle|$.

Число независимых компонент тензора эффективной нелинейной проводимости $k^e_{\alpha\beta\gamma\delta}$ определяется симметрией системы. Для простоты будем интересоваться только двумерными системами, например, текстурированными пленками или модельными системами, типа тех, что обсуждаются в работе [3]. Полностью изотропная пленка будет характеризоваться тремя независимыми компонентами $k^e_{xxxx} = k^e_{yyyy}$, $k^e_{xxyy} = k^e_{yyxx}$, $k^e_{xyyx} = k^e_{yxxy}$ и $k^e_{xyxy} = k^e_{yxyx}$, поскольку в этом случае имеется дополнительная связь $k^e_{xxxx} = k^e_{xxyy} + k^e_{xyxy} + k^e_{xyyx}$. Таким образом, для изотропной пленки коррелятор можно записать в виде

$$K = k^e_{xxxx}, \tag{20}$$

т. е. генерация гармоник характеризуется одной константой $k^e_s = k^e_{xxxx}$, а амплитуда третьей гармоники определяется выражением (17). Отметим сразу, что в случае текстуры с гексагональной симметрией выражение для коррелятора совпадает с выражением для изотропной среды.

Рассмотрим теперь случай, когда пространственное распределение однородно, а угловое неизотропно. Простейший пример такой ситуации может быть реализован так, как описано в работе [3]. В проводящей матрице создавались диэлектрические включения квадратной формы. Центры включений были распределены равновероятно по плоскости пленки, а все квадраты имели одинаковую ориентацию. Для такой среды тензор $k^e_{\alpha\beta\gamma\delta}$ имеет четыре независимые компоненты $k^e_{xxxx} = k^e_{yyyy}$, $k^e_{xxyy} = k^e_{yyxx}$, $k^e_{xyyx} = k^e_{yxxy}$ и $k^e_{xyxy} = k^e_{yxyx}$, а коррелятор K можно представить в виде

$$K = k^e_{xxxx}(n_x^4 + n_y^4) + 2(k^e_{xxyy} + k^e_{xyxy} + k^e_{xyyx})n_x^2 n_y^2. \quad (21)$$

Удобно преобразовать (21) к виду

$$K = k^e_s + 2k^e_q n_x^2 n_y^2, \quad (22)$$

где $k^e_s = k^e_{xxxx}$, $k^e_q = (k^e_{xxyy} + k^e_{xyxy} + k^e_{xyyx} - k^e_{xxxx})$.

Из (17) и (22) видно, что амплитуда третьей гармоники определяется микрогеометрией композита. Важно отметить, информация о микрогеометрии может быть получена путем измерения макроскопических характеристик системы.

В качестве примера обсудим метод, который позволяет получить информацию о микрогеометрии текстуры с локальной кубической симметрией. Если микрокомпоненты текстуры распределены неизотропно, то информация об этом может быть извлечена путем измерения третьей гармоники. Согласно (15) и (22), амплитуда третьей гармоники может быть выражена через коррелятор, в котором присутствует комбинация четырех токов и тензор нелинейного сопротивления. Как видно из (22), амплитуда будет содержать информацию о коэффициенте k_q. Чтобы извлечь эту информацию, допустим, что внешний ток имеет две проекции на оси координат. Пусть частоты колебаний компонент ω_x и ω_y. Для этого случая подставим (22) в выражение для отклика (15). Легко видеть, что в этом случае функция отклика содержит наряду с гармониками $3\omega_x$ и $3\omega_y$ также колебание на комбинационных частотах. Например, компоненты тока по оси x содержат гармоники на комбинированных частотах $3\omega_x \pm \omega_y$ и т.д. Амплитуды этих колебаний пропорциональны коэффициенту k_q.

Таким образом, нелинейный отклик содержит дополнительную информацию о микрогеометрии случайной среды. В данной работе показано, что информация о текстуре может быть получена путем измерения макроскопической характеристики системы — амплитуды третьей гармоники. Проверку предсказанных зависимостей можно осуществить как на текстурированных пленках, так и на модельных системах [3]. Дополнительная информация может быть получена за счет зависимости амплитуд от внешнего магнитного поля. Магнитное поле может перераспределять токи в структуре и менять асимптотики полей вблизи особенностей. Высшие моменты поля и тока оказываются весьма чувствительными к магнитному полю, поэтому изучение генерации гармоник в магнитном поле позволит извлечь дополнительную информацию о микроструктуре композитов. Детальное исследование поведения высших гармоник в магнитном поле будет проведено в другом месте.

Список литературы

[1] Proc. of 3^d Intern. Conf. on Electrical Transport and Optical Properties of Inhomogeneous Media. Physica. 1994. Vol. A207.
[2] *De Arcangelis L., Reder S., Coniglio A.* // Phys. Rev. 1986. Vol. B34. P. 4656.
[3] *Dubson M.A., Hui Y.C., Wiessman M.B., Garland J.C.* // Phys. Rev. 1986. Vol. B39. P. 6807.
[4] *Aharony A.* // Phys. Rev. Lett. 1987. Vol. 58. N 25. P. 2726.
[5] *Stroud D., Hui P.M.* // Phys. Rev. 1988. Vol. B37. P. 8719.
[6] *Bergman D.J.* // Phys. Rev. 1989. Vol. B39. P. 4548.
[7] *Levy O., Bergman D.J.* // Phys. Rev. 1994. Vol. B50. P. 3652.
[8] *Снарский А.А.* // Письма в ЖТФ. 1995. Т. 21. Вып. 1. С. 3.
[9] *Дыхне А.М., Зосимов В.В., Рыбак С.Ф.* // ДАН. 1995. № 345. С. 467.
[10] *Пенфилд П., Спейс Р., Дюникер С.* Энергетическая теория электрических цепей. М.: Энергия, 1974.