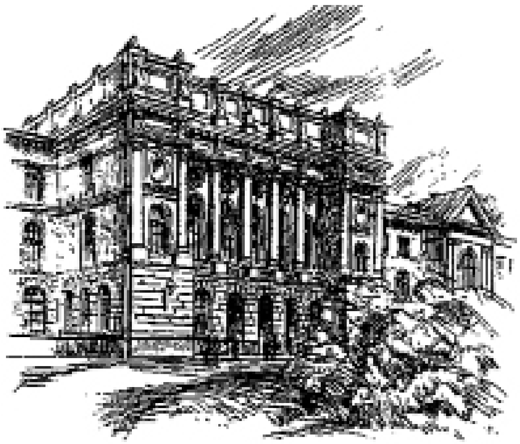
МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ



НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ ВЕДОМОСТИ

САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА

Физико-математические науки

Том 14, №1
2021

Санкт-Петербургский политехнический
университет Петра Великого
2021

НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ ВЕДОМОСТИ САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА. ФИЗИКО-МАТЕМАТИЧЕСКИЕ НАУКИ

Журнал с 2002 г. входит в Перечень ведущих рецензируемых научных журналов и изданий, в которых должны быть опубликованы основные результаты диссертаций на соискание ученых степеней доктора и кандидата наук.

Сведения о публикациях представлены в Реферативном журнале ВИНИТИ РАН, в международной справочной системе «Ulrich's Periodical Directory».

С 2008 года выпускается в составе сериального периодического издания «Научно-технические ведомости СПбГПУ».

Журнал зарегистрирован Федеральной службой по надзору в сфере информационных технологий и массовых коммуникаций (Роскомнадзор). Свидетельство о регистрации ПИ № ФС77-52144 от 11 декабря 2012 г.

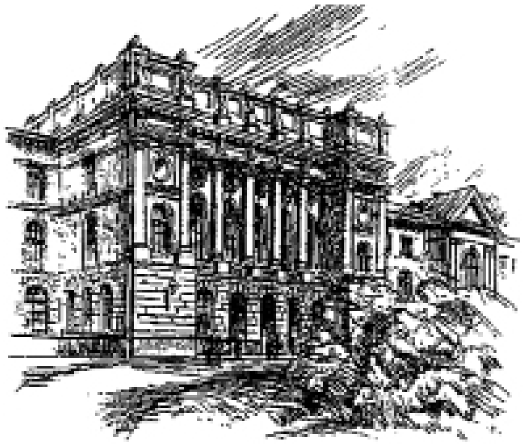
Распространяется по Каталогу стран СНГ, Объединенному каталогу «Пресса России» и по Интернет-каталогу «Пресса по подписке». Подписной индекс 71823.

Журнал индексируется в базе данных **Web of Science** (Emerging Sources Citation Index), а также включен в базу данных «**Российский индекс научного цитирования**» (РИНЦ), размещенную на платформе Научной электронной библиотеки на сайте

http://www.elibrary.ru

Адрес редакции и издательства:
Россия, 195251, Санкт-Петербург, ул. Политехническая, д. 29.
Тел. редакции (812) 294-22-85.
http://ntv.spbstu.ru/physics

THE MINISTRY OF SCIENCE AND HIGHER EDUCATION OF THE RUSSIAN FEDERATION



ST. PETERSBURG STATE POLYTECHNICAL UNIVERSITY JOURNAL

Physics and Mathematics

VOLUME 14, No.1, 2021

Peter the Great St. Petersburg
Polytechnic University
2021

ST. PETERSBURG STATE POLYTECHNICAL UNIVERSITY JOURNAL.
PHYSICS AND MATHEMATICS

The journal is included in the List of leading peer-reviewed scientific journals and other editions to publish major findings of theses for the research degrees of Doctor of Sciences and Candidate of Sciences.

The publications are presented in the VINITI RAS Abstract Journal and Ulrich's Periodical Directory International Database.

The journal is published since 2008 as part of the periodical edition 'Nauchno-tekhnicheskie vedomosti SPb-GPU'.

The journal is registered with the Federal Service for Supervision in the Sphere of Telecom, Information Technologies and Mass Communications (ROSKOMNADZOR). Certificate ПИ № ФС77-52144 issued December 11, 2012.

The journal is distributed through the CIS countries catalogue, the «Press of Russia» joint catalogue and the «Press by subscription» Internet catalogue. The subscription index is **71823**.

The journal is in the **Web of Science** (Emerging Sources Citation Index) and the **Russian Science Citation Index** (RSCI) databases.

© Scientific Electronic Library (http://www.elibrary.ru).

Address: 195251 Politekhnicheskaya St. 29, St. Petersburg, Russia.

Phone: (812) 294-22-85.

http://ntv.spbstu.ru/physics

Содержание

Физика конденсированного состояния

Математическое моделирование физических процессов

Атомная физика, физика кластеров и наноструктур

Математическая физика

Физическая электроника

Ядерная физика

Теоретическая физика

Математика

Механика

Contents

DOI: 10.18721/JPM.14101
УДК 538.915+975; 544.22.022.343; 544.225.22+25

ЭЛАСТОПРОВОДИМОСТЬ КРЕСЕЛЬНЫХ ГЕРМАНЕНОВЫХ НАНОЛЕНТ С ДОНОРНЫМИ ДЕФЕКТАМИ

О.С. Лебедева[1,2], **Н.Г. Лебедев**[1], **И.А. Ляпкосова**[2]

[1] Волгоградский государственный университет,
г. Волгоград, Российская Федерация;

[2] Волгоградский государственный аграрный университет,
г. Волгоград, Российская Федерация

В работе представлены и проанализированы результаты теоретических расчетов пьезорезистивных характеристик примесных германеновых нанолент кресельного типа (“arm-chair”) с донорными дефектами разной концентрации, однородно распределенными в кристаллической решетке наноматериала. В качестве донорных примесей использованы атомы мышьяка. Исследование зонной структуры нанолент проведено в рамках моделей Хаббарда и Андерсона. Вычисление основной характеристики пьезорезистивного эффекта – продольной компоненты тензора эластопроводимости выполнено в рамках тех же теоретических моделей с использованием метода функций Грина. Проанализированы зависимости указанной компоненты от относительной деформации растяжения и сжатия, концентрации примесей и ширины наноленты.

Ключевые слова: зонная структура, напряженно-деформированное состояние, пьезорезистивный эффект, тензор эластопроводимости

Ссылка при цитировании: Лебедева О.С., Лебедев Н.Г., Ляпкосова И.А. Эластопроводимость кресельных германеновых нанолент с донорными дефектами // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 8–20. DOI: 10.18721/JPM.14101

ELASTIC CONDUCTIVITY OF GERMANENE “ARM-CHAIR” NANORIBBONS WITH DONOR IMPURITIES

O.S. Lebedeva[1,2], **N.G. Lebedev**[1], **I.A. Lyapkosova**[2]

[1] Volgograd State University,
Volgograd, Russian Federation;

[2] Volgograd State Agricultural University,
Volgograd, Russian Federation

In the article, results of theoretical calculations of the piezoresistance characteristics of impurity germanene nanoribbons (NR) of the “arm-chair” type with donor defects with various concentrations uniformly distributed in the crystal lattice of the nanomaterial have been presented and analyzed. Arsenic atoms were used as donor impurities. Investigations of the NR’s band structure were carried out in the frameworks of the Hubbard’s and Anderson’s models. The computation of the main characteristic of the piezoresistance effect, i.e., the longitudinal component of the elastic conductivity tensor was carried out using the Green's function method within the framework of the same theoretical models. An analysis of the dependence of this characteristic on the tensile and compressive strains, the concentration of impurities and the nanoribbon width were carried out.

Keywords: band structure, stress-strain state, piezoresistance effect, elastic conductivity tensor

Citation: Lebedeva O.S., Lebedev N.G., Lyapkosova I.A. Elastic conductivity of germanene "arm-chair" nanoribbons with donor impurities, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 8–20. DOI: 10.18721/JPM.14101

Введение

Одной из приоритетных проблем физики конденсированного состояния является получение материалов с заданными свойствами и возможностью управлять ими. С 2004 года проводится активный синтез и исследования наноматериалов на основе углерода (графен, графеновые наноленты), обладающих практически важными электронными, проводящими, оптическими, механическими свойствами, что может расширить спектр их использования [1 – 3].

Электронные характеристики графеновых нанолент довольно разнообразны и зависят от природы и концентрации примесей, приложенных внешних полей, механических деформаций и т. п. С 2004 года, когда был синтезирован графен, он стал объектом самых многообещающих технологий наноэлектромеханических систем для разработки наноэлектронных приборов. Его можно использовать вместо кремния в качестве основы для транзисторов, кантилевера для атомно-силового микроскопа, химических сенсоров и др.

Несмотря на совокупность уникальных свойств, графен в свете практического применения не лишен ряда недостатков, например, у него практически полностью отсутствует запрещенная зона энергий, что не дает возможности закрытия канала полевого транзистора на его основе [4]. Одним из приоритетных решений этой проблемы является поиск новых неуглеродных перспективных 2D-материалов, имеющих структуру, аналогичную графену, но при этом обладающих запрещенной зоной, достаточно удобной по величине.

В 2013 году путем компьютерного выбора среди материалов, которые бы обладали свойствами, подобными графену, и структурой, аналогичной двумерной, было выявлено 92 перспективных аналога [5]. Сорок из них ранее никогда не предлагались в качестве веществ, подобных графену, и их свойства, в том числе и проводящие, остаются малоизученными. Несмотря на такое обилие выбранных аналогов, перспективных для создания основы наноэлектронных устройств, их использование сильно ограничивается проблемами синтеза и взаимодействия с подложкой. Поэтому актуальной задачей первого этапа работы должен быть отбор аналогов среди реально синтезированных наноматериалов «семейства графена» и изучение их пьезорестивных свойств.

Предсказанный в 2009 году и успешно синтезированный в 2014, германен следует считать одним из самых перспективных наноматериалов «постграфеновой эры» [6 – 9].

Запрещенная энергетическая щель германена и его электронные свойства чувствительны к внешним полям, механическим деформациям и химической адсорбции [10, 11]. В соответствии с теоретическими исследованиями, ширина запрещенной зоны германена равна примерно 24 мэВ ($E_g \approx$ ≈ 24 мэВ), что на несколько порядков превышает известную для графена ($E_g < 0,05$ мэВ). Увеличение ширины запрещенной зоны открывает возможности использования германена в устройствах, работа которых основана на полевых эффектах, таких как транзисторы. Этого можно добиться как приложением внешних воздействий [12], так и целенаправленным допированием наноматериала акцепторными и донорными примесями различных концентраций. Через объединение деформационного механического воздействия и варьирование количества дефектов, можно создать эффективный механизм управления запрещенной зоной германена.

Настоящая работа посвящена теоретическому исследованию (а следовательно, предсказанию) пьезорезистивных свойств примесных германеновых нанолент (nanoribbon (NR)) – GeNRs.

Модель электронного строения деформированных примесных германеновых нанолент

Геометрическая модель германеновых нанолент (GeNRs) выбирается на основе вида двумерного гексагонального слоя. На рис. 1 показана деформированная элементарная ячейка кристаллической решетки германена, где через α обозначен угол между векторами основных трансляций $\mathbf{a}_1$ и $\mathbf{a}_2$, через $\mathbf{\Delta}_i$ – вектор межатомных расстояний, через a – постоянная решетки деформированной GeNR ($a_1 = a_2 = a$). Длина и ширина наноленты отмерены вдоль осей Ox и Oy соответственно.

Электронный спектр недеформированных GeNRs в рамках метода сильной связи и в приближении ближайших соседей можно представить в следующем виде [13]:

$$\varepsilon(\mathbf{k}) = \pm t_0 \left\{ 1 + 4\cos\left(\frac{\mathbf{k}(\mathbf{a}_1+\mathbf{a}_2)}{2}\right) \times \right.$$
$$\times \cos\left(\frac{\mathbf{k}(\mathbf{a}_1-\mathbf{a}_2)}{2}\right) + \qquad (1)$$
$$\left. + 4\cos^2\left(\frac{\mathbf{k}(\mathbf{a}_1-\mathbf{a}_2)}{2}\right) \right\}^{1/2},$$

где t_0, эВ, – резонансный, или прыжковый интеграл (t_0 = 1,47 эВ [6]); $\mathbf{k}$, см$^{-1}$, – волновой вектор; $\mathbf{a}_1$, $\mathbf{a}_2$, нм, – векторы основных трансляций.

Уровень Ферми в формуле (1) традиционно принимается за 0 эВ.

Направление вектора ($\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2$) называется кресельным, или “arm-chair”, а вектора ($\mathbf{a}_1$ – – $\mathbf{a}_2$) – зигзагообразным, или “zig-zag”.

Условие квантования волнового вектора $\mathbf{k}$ в направлении, поперечном длине NR, можно записать следующим образом [13]:

$$3k_x R_0 = \frac{2\pi q}{N_x}, \quad q = 1, 2, \ldots, N_x \qquad (2)$$

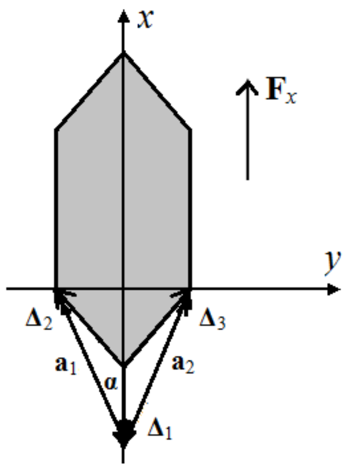


Рис. 1. Фрагмент структуры кресельной германеновой наноленты, деформированной продольным растяжением силой $\mathbf{F}_x$:
$\mathbf{\Delta}_i$ (i = 1, 2, 3) – векторы межатомных расстояний;
$\mathbf{a}_1$, $\mathbf{a}_2$ – векторы основных трансляций;
α – угол между векторами $\mathbf{a}_1$ и $\mathbf{a}_2$

для германеновых нанолент кресельного типа и

$$\sqrt{3} k_y R_0 = \frac{2\pi q}{N_y}, \quad q = 1, 2, \ldots, N_y \qquad (3)$$

для нанолент зигзагообразного типа.

Здесь R_0, нм, – равновесное межатомное расстояние в недеформированной GeNR; k_x, k_y, см$^{-1}$, – волновые числа в зоне Бриллюэна.

На рис. 1 показана геометрическая модификация германенового гексагона кристаллической решетки GeNR кресельного типа, деформированной продольным растяжением силой $\mathbf{F}_x$.

Моделирование зонной структуры деформированных GeNRs осуществляется преобразованием параметров элементарной ячейки и зоны Бриллюэна. Эта процедура подробно описана в работе [15].

Если ввести величину относительной деформации длины межатомной связи R как $\delta = \Delta R/R_0$, где ΔR – изменение равновесной длины (Ge-Ge)-связи R_0 ($\Delta R = R - R_0$), то можно получить следующие выражения для компонент волнового вектора [15]:

$$\frac{\mathbf{k}_x\left(\mathbf{a}_1+\mathbf{a}_2\right)}{2}= \\ =k_x R_0\left(1+\delta\right)\left(1+\cos\alpha\right),$$

$$\frac{\mathbf{k}_y\left(\mathbf{a}_1-\mathbf{a}_2\right)}{2}= \\ =k_y R_0\left(1+\delta\right)\sin\alpha=\frac{\pi q}{n}, \\ q=1,2,...,n \tag{4}$$

для GeNR кресельного типа ($k_x \in$ зоне Бриллюэна);

$$\frac{\mathbf{k}_x\left(\mathbf{a}_1+\mathbf{a}_2\right)}{2}= \\ =k_x R_0\left[\left(1+\delta\right)\cos\alpha+1-\delta\right]=\frac{\pi q}{n}, \\ q=1,2,...,n, \tag{5}$$

$$\frac{\mathbf{k}_y\left(\mathbf{a}_1-\mathbf{a}_2\right)}{2}=k_y R_0\left(1+\delta\right)\sin\alpha$$

для GeNR зигзагообразного типа ($k_y \in$ зоне Бриллюэна).

В результате деформации растяжения (сжатия) изменяются и поперечные размеры GeNR, а, следовательно, и модуль хирального вектора [13] модифицируется следующим образом:

$$C_h=C_{h0}\left(1-\nu\delta\right), \\ C_{h0}=a_0\sqrt{N_x{}^2+N_y{}^2+N_xN_y}, \tag{6}$$

где a_0, нм, – постоянная решетки недеформированной GeNR, $a_0 = R_0$; N_x, N_y – целые числа, определяющие размер и тип наноленты ($N_y = 0$ для кресельного типа и $N_y = N_x$ для зигзагообразного); ν – коэффициент Пуассона, принимающий значения 0,27 и 0,19 для GeNRs кресельного и зигзагообразного типов, соответственно.

Угол α можно оценить из соотношения (6) [15]:

$$\sin\alpha=\left(\frac{1-\nu\delta}{1+\delta}\right)\sin\alpha_0,$$

$$\cos\alpha=\sqrt{1-\sin^2\alpha}$$

для GeNR кресельного типа;

$$\cos\alpha=\frac{1}{\left(1+\delta\right)}\times \\ \times\left[\left(1-\nu\delta\right)\left(1+\cos\alpha_0\right)-1+\delta\right],$$

$$\sin\alpha=\sqrt{1-\cos^2\alpha}$$

для GeNR зигзагообразного типа.

В конечном итоге электронный спектр деформированных германеновых NRs принимает вид [15]:

$$\varepsilon_a(\mathbf{k})=\pm\gamma(\delta)\left\{1\pm4\cos\left(\frac{\pi q}{n}\right)\times\right. \\ \times\cos\left[k_xR_0(1+\delta)(1+\cos\alpha)\right]+ \\ \left.+4\cos^2\left(\frac{\pi q}{n}\right)\right\}^{1/2}, \tag{7}$$

$$\varepsilon_z(\mathbf{k})= \\ =\pm\gamma(\delta)\left\{1\pm4\cos\left[k_yR_0\left(1+\delta\right)\sin\alpha\right]\times\right. \\ \left.\times\cos\left(\frac{\pi q}{n}\right)+4\cos^2\left[k_yR_0\left(1+\delta\right)\sin\alpha\right]\right\}^{1/2}, \tag{8}$$

где γ(δ) – резонансный интеграл деформированных GeNRs как функция относительной деформации δ; нижние индексы *a* и *z* обозначают спектры кресельных и зигзагообразных нанолент; знаки плюс-минус следуют из того, что в элементарной ячейке наноленты содержится четыре атома германия.

Электронный спектр деформированных GeNRs в отсутствие примесей, с учетом кулоновского отталкивания на одном узле, рассчитывался в рамках модели Хаббарда [16], что подробно описано в работе [17]:

$$E(\mathbf{k}) = \frac{1}{2}\Big[\varepsilon(\mathbf{k}) + U \pm \sqrt{\varepsilon(\mathbf{k})^2 - 2\varepsilon(\mathbf{k})U(1-2n_{-\beta}) + U^2}\,\Big], \tag{9}$$

где $\varepsilon(\mathbf{k})$ – зонная структура идеальных NR; U, Дж, – энергия кулоновского взаимодействия на одном узле, которая является параметром полуэмпирического метода квантовой химии MNDO [18]; $n_{-\beta}$ – число электронов с противоположным спином в зоне.

Сравнительный анализ изображения зонных структур $E(\mathbf{k})$ выражения (9) и $\varepsilon(\mathbf{k})$ формулы (7) для GeNR кресельного типа не выявил существенных качественных различий.

Количественная оценка ширины энергетической щели полупроводниковой GeNR в случае деформации продольного растяжения (сжатия) показал ее уширение (сужение). Так же ведут себя и зона проводимости, и валентная зона. В результате увеличивается (уменьшается) плотность электронных состояний в этих зонах. Подобное поведение дисперсионных кривых наблюдалось при исследовании деформационных эффектов в ахиральных (кресельных и зигзагообразных) углеродных нанотрубках [15, 17].

Бесщелевая зонная структура проводящих кресельных GeNRs в случае продольного растяжения (сжатия) также изменяется вышеописанным образом. Исключением из аналогичного поведения является непоявление запрещенных зон в спектрах таких лент, они остаются проводящими.

Продольное растяжение проводящих GeNRs также не оказывает принципиального влияния на качественное поведение их зонной структуры, запрещенная энергетическая зона при этом отсутствует при малых деформациях.

Добавление примесей в кристаллическую структуру рассматриваемых GeNRs может способствовать изменению их пьезорезистивности, как показано на примере графеновых нанолент в работе [19], что позволит целенаправленно влиять на их проводимость.

Расчет электронного спектра допированных GeNRs проводился с использованием периодической модели Андерсона [16]. Эта модель заключается в отдельном рассмотрении коллективизированных π-электронов и локализованных электронов, взаимодействие между которыми учитывается путем введения потенциала гибридизации. Модель успешно адаптирована к изучению влияния точечных дефектов (донорных и акцепторных) на зонную структуру графеновых нанолент [19].

Электронный спектр GeNR в рамках модели Андерсона имеет следующий вид [16]:

$$E(\mathbf{k}) = \frac{1}{2}\Big[\varepsilon_l + \varepsilon(\mathbf{k}) \pm \sqrt{(\varepsilon_l - \varepsilon(\mathbf{k}))^2 + 36\left|V_{\mathrm{GeD}}(\delta)\right|^2 \cdot x}\,\Big], \tag{10}$$

где $\varepsilon(\mathbf{k})$, эВ, – зонная структура идеальной (беспримесной) наноленты, выражаемая формулой (7); ε_l, эВ, – энергия электронов на дефекте; $x = N_d/N$ – концентрация примесей (N – число элементарных ячеек в кристалле, N_d – количество дефектов); $V_{\mathrm{GeD}}(\delta)$, эВ, – потенциал гибридизации, который представляет собой матричный элемент энергии взаимодействия между электронами кристалла и точечного дефекта и является функцией относительной деформации δ.

В данной работе в качестве точечных дефектов рассмотрены донорные примеси в виде атомов мышьяка. Энергию электрона на дефекте можно оценить как разность потенциалов ионизации атомов примеси и кристаллита:

$$\varepsilon_l = I_{\mathrm{Ge}} - I_{\mathrm{As}} = (7{,}88 - 9{,}81)\ \text{эВ} = -1{,}93\ \text{эВ}.$$

Зависимости прыжкового интеграла $\gamma(\delta)$ и потенциала гибридизации $V_{\mathrm{GeD}}(\delta)$ от относительной деформации вычислялись методом теории функционала плотности с использованием обменно-корреляционного потенциала B3LYP в базисе атомных орбиталей STO-3G [18]. Для осуществления квантовохимических расчетов рассматривался фрагмент поверхности германена размером

6 × 6 элементарных ячеек (UC). Граничные ненасыщенные связи замыкались одновалентными атомами водорода. Атом дефекта (As) помещался в центр построенного кластера, чтобы уменьшить влияние граничных атомов. Моделирование деформации структуры вдоль направления "arm-chair" проводилось путем пошагового замораживания атомов германия на противоположных границах фрагмента. Полученные численные значения зависимостей $\gamma(\delta)$ и $V_{\mathrm{GeD}}(\delta)$ интерполировались следующими аналитическими выражениями:

$$\begin{gathered}\gamma=\gamma_0\exp\left(-1{,}9523R\right),\\ V_{\mathrm{GeD}}=V_0\exp\left(-1{,}9523R\right),\\ R=R_0\left(1+\delta\right);\\ \gamma_0=171{,}11\ \text{эВ},\\ V_0=152{,}37\ \text{эВ}.\end{gathered}\tag{11}$$

Равновесные длины межатомных связей в дальнейших расчетах полагались равными R_0 = 2,44 Å; это значение было получено в результате предварительной оптимизации геометрической структуры построенного фрагмента германена вышеописанным методом теории функционала плотности.

Добавление донорных примесей различных концентраций в систему недеформированных GeNRs приводит к изменению зонной структуры последних. Особенности энергетического спектра низкоразмерных структур с донорным атомом азота в кристаллической решетке проанализированы на примере углеродных нанотрубок в работе [17]. Зона примесных состояний в этом случае локализована вблизи уровня энергии электрона на дефекте ε_l и содержит локальную энергетическую щель, которая не изменяет свойства кристаллита в целом. С увеличением концентрации примесей происходит все большее изменение зонной структуры углеродных нанотрубок, а именно – увеличение локальной энергетической щели.

Описанные особенности электронного спектра недеформированных углеродных нанотрубок с примесями подтверждаются общей теорией модели Андерсона [16].

Эластопроводимость германеновых нанолент с акцепторными дефектами

Согласно рекомендациям монографии [20], определение тензора эластопроводимости двумерных кристаллических структур можно записать в виде

$$\begin{gathered}\frac{\Delta\sigma_{\xi\rho}}{\langle\sigma\rangle}=M_{\xi\rho\chi\eta}\cdot\delta_{\chi\eta},\\ \langle\sigma\rangle=\frac{1}{2}\mathrm{Sp}[\sigma]=\frac{\sigma_{xx}+\sigma_{yy}}{2},\\ M_{\xi\rho\chi\eta}=M_{\rho\xi\chi\eta}=M_{\rho\xi\eta\chi}=M_{\xi\rho\eta\chi},\end{gathered}\tag{12}$$

где $\sigma_{\xi\rho}$ – тензор удельной проводимости; $\delta_{\chi\eta}$ – тензор деформаций; $\xi, \rho, \chi, \eta = x, y$.

Для случая квазиодномерных структур (например, кресельной GeNR) продольная компонента $M = M_{xxxx}$ тензора эластопроводимости 4-го ранга может быть выражена следующей формулой:

$$M=\frac{\Delta\sigma}{\sigma_0}\frac{1}{\delta},\tag{13}$$

где $\Delta\sigma$, См/м, – изменение продольной компоненты тензора удельной проводимости, обусловленное деформацией; σ_0, См/м, – продольная компонента σ_{xx} тензора 2-го ранга удельной проводимости недеформированных кресельных нанолент, $\Delta\sigma = \sigma - \sigma_0$ (σ, См/м, – та же компонента σ_{xx} деформированных нанолент).

Выражение для расчета продольной компоненты σ тензора удельной проводимости кресельных германеновых NRs, полученное в рамках теории Кубо – Гринвуда [21] с использованием метода функций Грина и модельного гамильтониана Хаббарда [18], представлено в работах [17, 19]:

$$\sigma=2\frac{i\pi e^2}{k_{\mathrm{B}}TV}\sum_{\mathbf{k},\beta}\sum_{\mathbf{q},\lambda}v(\mathbf{k})v(\mathbf{q})\left\langle n_{\mathbf{k}\beta}\right\rangle\times$$

$$\times\left[\left\langle n_{\mathbf{q}\lambda}\right\rangle+\delta_{\mathbf{kq}}\delta_{\beta\lambda}\left(1-\left\langle n_{\mathbf{k}\beta}\right\rangle\right)\right], \qquad (14)$$

где V, м^3, – объем наноленты; T, K, – абсолютная температура; e, Кл, – элементарный заряд; $\mathbf{k}$, $\mathbf{q}$ – двухкомпонентные волновые векторы в пределах зоны Бриллюэна (ЗБ); β, λ – спиновые индексы; $v(\mathbf{k})$, м/с, – продольная компонента вектора скорости электрона в зоне Бриллюэна; $\left\langle n_{\mathbf{k}\beta}\right\rangle$ – среднее число частиц в квантовом состоянии с волновым вектором $\mathbf{k}$ и спином β.

Среднее число частиц $\left\langle n_{\mathbf{k}\beta}\right\rangle$ выражается функцией распределения Ферми – Дирака:

$$\left\langle n_{\mathbf{k}\beta}\right\rangle=\left[1+\exp\left(\frac{\varepsilon(\mathbf{k})-\mu}{k_B T}\right)\right]^{-1},$$

где k_B, Дж/K, – постоянная Больцмана; μ, Дж/моль, – химический потенциал, который находится из условия нормировки функции распределения на полное число N_e электронов в системе; это число выражается как

$$N_e=\sum_{\mathbf{k},\beta}\left\langle n_{\mathbf{k}\beta}\right\rangle=$$

$$=\sum_{\mathbf{k},\beta}\left[1+\exp\left(\frac{\varepsilon(\mathbf{k})-\mu}{k_B T}\right)\right]^{-1}.$$

Вектор скорости определяется стандартным способом с помощью электронного спектра (10):

$$\mathbf{v}(\mathbf{k})=\frac{1}{h}\frac{\partial E(\mathbf{k})}{\partial \mathbf{k}}. \qquad (15)$$

В данной работе представлены результаты изучения пьезорезистивных свойств кресельных GeNRs разной ширины и с разным типом проводимости – nArm, где n задает число элементарных ячеек (UC) вдоль ширины ленты. Значения параметров, использованных в расчетах, сведены в таблицу.

Зависимости продольной компоненты M тензора эластопроводимости от величины относительной деформации δ, рассчитанные по формуле (13), представлены на рис. 2. Расчетные точки на рисунках отмечены символами и соединены линиями.

Рассмотрен случай так называемого половинного заполнения зоны, т. е. от каждого атома германия в систему включался один

Таблица

Значения параметров модели, использованные в расчетах

Параметр	Обозначение	Значения
Число UC по NR вдоль длины вдоль ширины	 N n	 10 000 9, 10, 50, 100
Число дефектов в NR	N_d	1, 10, 100, 1000
Относительная деформация сжатия (растяжения)	δ	–0,10; –0,06; –0,04; –0,02; –0,01; 0,01; 0,02; 0,04; 0,06; 0,10
Равновесная длина межатомных связей (Ge-Ge), Å	R_0	2,44
Температура деформации, K	T	300

Примечание: UC – элементарная ячейка, NR – нанолента.

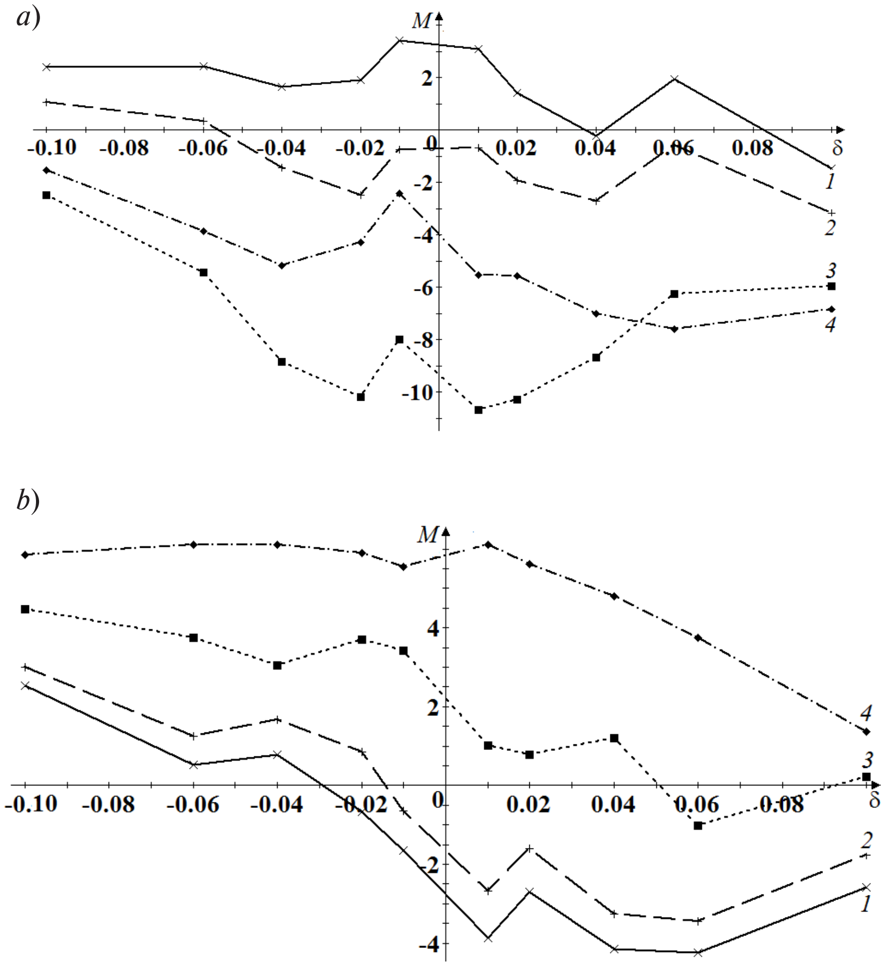


Рис. 2. Зависимости продольной компоненты M тензора эластопроводимости кресельных 9Arm GeNRs (*a*) и 10Arm GeNRs (*b*) (9 и 10 – числа UC вдоль ширины) от величины относительной деформации δ для различной концентрации донорных дефектов N_d: 1(*1*), 10 (*2*), 100 (*3*), 1000 (*4*); Расчетные точки на рисунках отмечены символами и соединены линиями

электрон, от каждого примесного атома мышьяка – два. Таким образом, полное число электронов вычислялось как $N_e = N{\cdot}n + N_d$.

Как следует из рис. 2, *a*, величина M для проводящей кресельной 9Arm NR положительна при малой концентрации дефектов ($N_d = 1$) и отрицательна при всех остальных значениях концентрации. Все кривые $M(\delta)$ для проводящей 9Arm NR с разными концентрациями дефектов показывают немонотонное снижение с ростом деформации δ по всему диапазону ее значений. Исключение составляет случай $N_d = 100$, где коэффициент M проявляет монотонный рост в области $\delta > 0$ (деформация растяжения).

Поведение функции $M(\delta)$ полностью коррелирует с изменениями зонной структуры проводящих примесных нанолент, описанными выше. Увеличение ширины зоны проводимости ведет к снижению плотности состояний на уровне Ферми с ростом δ. Однако возникающая запрещенная энергетическая зона на уровне примеси расширяется при возрастании величин N_d и δ. Поэтому в результате конкуренции этих двух эффектов удельная проводимость наноленты в целом убывает, что ведет к описанному выше поведению компоненты M для случаев малой концентрации донорных примесей ($N_d = 1, 10$).

Увеличение концентрации примесей ведет к интересному эффекту. В целом численное значение коэффициента M уменьшается с ростом концентрации практически для всех расчетных значений относительной деформации δ. Но при концентрации $N_d = 100$ зависимость M(δ) лежит выше, чем для случая $N_d = 100$. Такое поведение величины M связано с тем, что вследствие тепловых флуктуаций электроны заполняют зону проводимости NR, способствуя повышению удельной проводимости. Рост концентрации донорных примесей увеличивает число носителей заряда в зоне проводимости. Все эти факторы изменяют удельную проводимость, вклад в которую вносят все заполненные электронные состояния в зоне проводимости.

Зависимость M(δ) для количества дефектов $N_d = 1000$ продолжает общую тенденцию поведения продольной компоненты NR 9Arm. Конкуренция между двумя факторами, а именно – уширением запрещенной зоны вблизи примесного уровня за счет роста концентрации дефектов и относительной деформации и увеличением числа свободных носителей, приводит к убыванию M(δ) в области δ < 0 (деформация сжатия) и ее возрастанию в области δ > 0 (деформация растяжения).

В случае полупроводниковых кресельных GeNRs (10Arm, 50Arm, 100Arm) поведение продольной компоненты тензора эластопроводимости M зависит от ширины изучаемой наноленты. Так, функция M(δ) GeNR 10Arm немонотонно убывает с ростом относительной деформации во всем диапазоне величины δ (рис. 2,*b*) для различных значений концентрации дефектов ($N_d = 1, 10, 100, 1000$). Начиная с δ = –0,1 величина M положительна для всех значений N_d. Положительное значение обусловлено увеличением удельной проводимости кристаллита с ростом деформации сжатия (δ < 0) вследствие сужения запрещенной зоны и увеличения числа свободных носителей в зоне проводимости.

Затем для случаев малых концентраций дефектов ($N_d = 1, 10$) кривые переходят в область отрицательных значений. Это обусловлено, как и в случае идеальных GeNRs [12], уменьшением удельной проводимости с ростом деформации δ. Объяснить этот эффект можно уширением энергетической щели E_g полупроводниковых NRs, что уменьшает число заполненных состояний в зоне проводимости.

Рост концентрации донорных дефектов ($N_d = 1, 10, 100, 1000$) в целом не изменяет тенденцию поведения величины M, только увеличивает ее численное значение.

Характер функциональной зависимости M(δ) меняется для широких NRs 50Arm и 100Arm. В отрицательной области величины δ (сжатие) наблюдается убывание величины M GeNR 50Arm для всех концентраций дефектов (рис. 3,*a*). При переходе в область положительных деформаций (растяжение) для случая $N_d = 1$ продольная компонента тензора эластропроводимости практически не изменяется вплоть до δ = 0,1 (область «плато»), в последнем случае видно ее возрастание. Дальнейший рост концентрации дефектов ($N_d = 10, 100, 1000$) приводит к ярко выраженному росту величины M в области деформации растяжения. Увеличение ширины ленты (100Arm) приводит к образованию «плато» и для случая $N_d = 10$ (рис. 3,*b*). Такой эффект соответствует поведению зонной структуры деформированных полупроводниковых NRs. Проявляется конкуренция между двумя факторами. Первый связан с ростом проводимости NR за счет увеличения числа свободных носителей в зоне проводимости, обусловленного донорными дефектами. Второй фактор – это блокировка проводимости ленты из-за увеличения E_g с ростом δ.

В целом увеличение ширины GeNR приводит к уменьшению величины запрещенной зоны $E_g \sim 1/H$, где H – ширина ленты. Это в свою очередь увеличивает удельную проводимость кристаллита и, соответственно, численное значение коэффициента M (рис. 3,*b*).

Описанный выше подход и аналитический алгоритм применялся к изучению пьезорезистивных свойств графеновых нанолент с до-

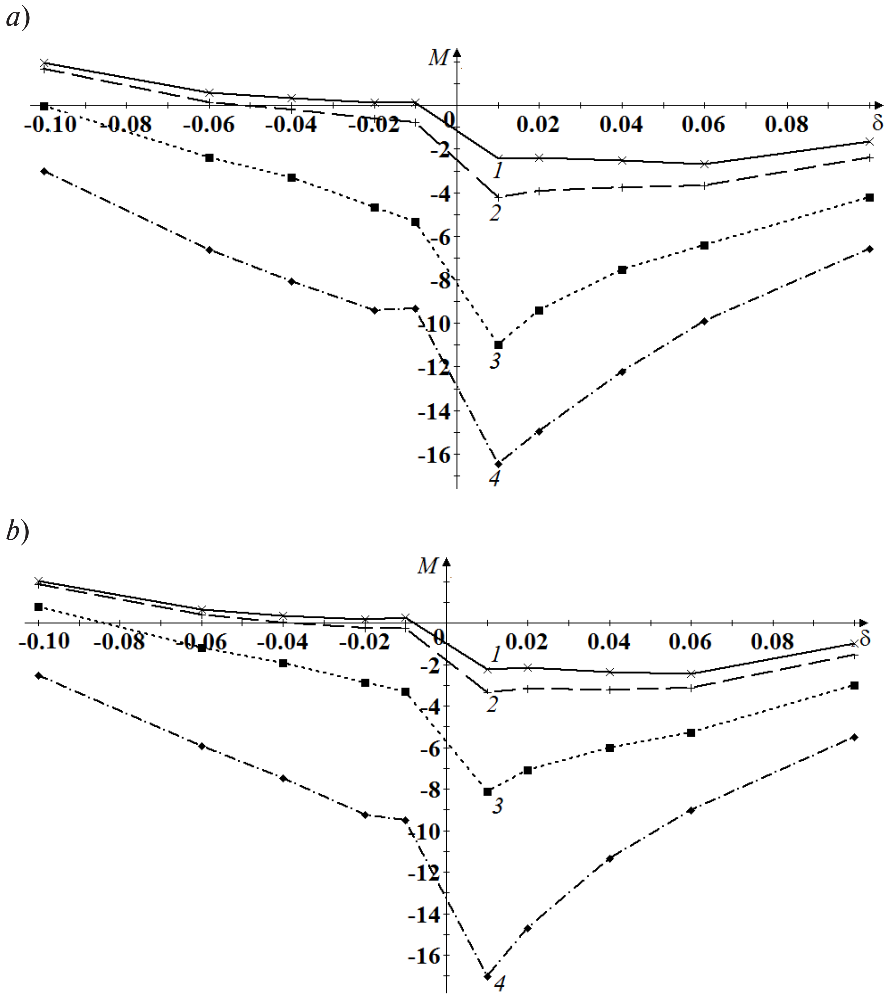


Рис. 3. Зависимости, аналогичные приведенным на рис. 2, но для 50Arm GeNRs (*a*) и 100Arm GeNRs (*b*) для тех же концентраций донорных дефектов N_d

норными и акцепторными примесями [19]. Сравнение тенденций поведения зависимостей $M(\delta)$, представленных в данной работе, с литературными данными по пьзорезистивным свойствам графеновых нанолент показало качественное согласие полученных результатов. Следует ожидать, что описанные свойства характерны и для других структур семейства графена.

Заключение

Теоретическое исследование пьезорезистивности германеновых нанолент кресельного типа (“arm-chair”) с разным типом проводимости, допированных точечными дефектами замещения, показало ряд особенностей качественного и количественного изменения продольной компоненты тензора эластопроводимости M.

Изучение поведения константы M и ее величины в зависимости от концентрации донорных примесей, геометрических параметров наноленты (в частности, ее ширины), величины деформации демонстрирует полную картину изменения продольной проводимости нанолент, обусловленного механическим сжатием и растяжением. Чувствительность тензора эластопроводимости к перечисленным факторам подтверждает возможность эффективного управления проводимостью германена.

Полученные теоретические данные можно предложить для количественной калибровки наноэлектромеханических приборов и устройств, в принципе функционирования которых лежит эффект пьезосопротивления, а базовым структурным материалом выступают германеновые наноленты.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ и Администрации Волгоградской области в рамках научного проекта № 19-42-343001_р_мол_а.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Морозов С.В., Новоселов К.С., Гейм А.К.** Электронный транспорт в графене // Успехи физических наук. 2008. Т. 178. № 7. С. 776–780.

2. **Лозовик Ю.Е., Меркулова С.П., Соколик А.А.** Коллективные электронные явления в графене // Успехи физических наук. 2008. Т. 178. № 7. С. 758–776.

3. **Чернозатонский Л.А., Сорокин П.Б., Артюх А.А.** Новые наноструктуры на основе графена: физико-химические свойства и приложения // Успехи химии. 2014. Т. 83. Вып. 3. С. 251–279.

4. **Lemme M.C.** Current status of graphene transistors // Solid State Phenomena. 2009. Vol. 156. October. Pp. 499–509.

5. **Lebègue S., Bjoerkman T., Klintenberg M., Nieminen R.M., Eriksson O.** Two-dimensional materials from data filtering and *ab initio* calculations // Physical Review X. 2013. Vol. 3. No. 3. P. 031002.

6. **Acun A., Zhang L., Bampoulis P., Farmanbar M., van Houselt A., Rudenko A.N., Lingenfelder M., Brocks G., Poelsema B., Katsnelson M.I., Zandvliet H.J.W.** Germanene: the germanium analogue of graphene // Journal of Physics: Condensed Matter. 2015. Vol. 27. No. 44. P. 443002.

7. **Behzad S.** Effect of uni-axial and bi-axial strains and vertical electric field on free standing buckled germanene // Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena. 2018. Vol. 229. December. Pp. 13–19.

8. **Ould NE M.L., El Hachimi A.G., Boujnah M., Benyoussef A., El Kenz A.** Comparative study of electronic and optical properties of graphene and germanene: DFT study // Optik. 2018. Vol. 158. April. Pp. 693–698.

9. **Kaloni T.P., Schwingenschlögl U.** Stability of germanene under tensile strain // Chemical Physics Letters. 2013. Vol. 583. 17 September. Pp. 137–140.

10. **Mortazavi B., Rahaman O., Makaremi M., Dianat A., Cunibertic G., Rabczuk T.** First-principles investigation of mechanical properties of silicene, germanene and stanene // Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures. 2017. Vol. 87. March. Pp. 228–232.

11. **Kazemlou V. Phirouznia A.** Influence of compression strains on photon absorption of silicene and germanene // Superlattices and Microstructures. 2019. Vol. 128. April. Pp. 23–29.

12. **Лебедева О.С., Лебедев Н.Г., Ляпкосова И.А.** Эластопроводимость силиценовых и германеновых нанолент // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2019. Т. 12. № 4. С. 38–49.

13. Physics of graphene. Edited by Aoki H., Dresselhaus M.S. (Nanoscience and Technology). Switzerland: Springer International Publishing, 2014. 345 p.

14. **Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.** Курс теоретической физики в 10 тт. Т. VII. Теория упругости. М.: Наука, Гл. ред. физ.-мат. лит-ры, 2003. 264 с.

15. **Лебедева О.С., Лебедев Н.Г.** Влияние растяжения и сжатия на пьезорезистивность углеродных нанотрубок и графеновых нанолент // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2014. № 1 (189) С. 26–34.

16. **Изюмов Ю.А., Чащин Н.И., Алексеев Д.С.** Теория сильно коррелированных систем. Метод производящего функционала. М.: Регулярная и хаотическая динамика, 2006. 384 с.

17. **Лебедева О.С., Лебедев Н.Г.** Пьезорезистивный эффект в примесных однослойных углеродных нанотрубках в приближении «Хаббард-I» // Научно-технические ведомости СПбГПУ. 2014. № 2 (195). С. 149–161.

18. **Степанов Н.Ф.** Квантовая механика и

квантовая химия. М.: Мир, 2001. 519 с.

19. **Lebedeva O.S., Lebedev N.G., Lyapkosova I.A.** The effect of isomorphic impurities on the elastic conductivity of Dirac structures // Journal of Physics: Condensed Matter. 2020. Vol. 32. No. 14. P. 145301.

20. **Бир Г.Л., Пикус Г.Е.** Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках. М.: Наука, 1972. 584 с.

21. **Квасников И.А.** Термодинамика и статистическая физика. В 4 тт. Т. 4. Квантовая статистика. М.: Комкнига, 2005. 352 с.

Статья поступила в редакцию 17.04.2020, принята к публикации 05.11.2020.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

ЛЕБЕДЕВА Ольга Сергеевна – *кандидат физико-математических наук, ассистент Волгоградского государственного университета и доцент Волгоградского государственного аграрного университета, г. Волгоград, Российская Федерация.*

400062, Российская Федерация, г. Волгоград, Университетский пр., 100

lebedeva_os@volsu.ru

ЛЕБЕДЕВ Николай Геннадьевич – *доктор физико-математических наук, профессор Волгоградского государственного университета, г. Волгоград, Российская Федерация.*

400062, Российская Федерация, г. Волгоград, Университетский пр., 100

nikolay.lebedev@volsu.ru

ЛЯПКОСОВА Ирина Александровна – *кандидат сельскохозяйственных наук, доцент Волгоградского государственного аграрного университета, г. Волгоград, Российская Федерация.*

400002, г. Волгоград, Университетский пр., 26

lyapkosova_irina@mail.ru

REFERENCES

1. **Morozov S.V., Novoselov K.S., Geim A.K.,** Electronic transport in graphene, Phys. Usp. 51 (7) (2008) 744–748.

2. **Lozovik Yu.E., Merkulova S.P., Sokolik A.A.,** Collective electron phenomena in graphene, Phys. Usp. 51 (7) (2008) 727–744.

3. **Chernozatonskii L.A., Sorokin P.B., Artukh A.A.,** New nanostructures based on graphene: physical and chemical properties and applications, Russ. Chem. Rev. 83 (2014) 251–279 (in Russian).

4. **Lemme M.C.,** Current status of graphene transistors, Solid State Phenomena. 156 (October) (2009) 499–509.

5. **Lebègue S., Bjoerkman T., Klintenberg M., et al.,** Two-dimensional materials from data filtering and *ab initio* calculations, Physical Review X. 3 (3) (2013) 031002.

6. **Acun A., Zhang L., Bampoulis P., et al.,** Germanene: the germanium analogue of graphene, Journal of Physics: Condensed Matter. 27 (44) (2015) 443002.

7. **Behzad S.,** Effect of uni-axial and bi-axial strains and vertical electric field on free standing buckled germanene, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena. 229 (December) (2018) 13–19.

8. **Ould NE M.L., El Hachimi A.G., Boujnah M., et al.,** Comparative study of electronic and optical properties of graphene and germanene: DFT study, Optik. 158 (April) (2018) 693–698.

9. **Kaloni T.P., Schwingenschlögl U.,** Stability of germanene under tensile strain, Chemical Physics Letters. 583 (17 September) (2013) 137–140.

10. **Mortazavi B., Rahaman O., Makaremi M.,**

et al., First-principles investigation of mechanical properties of silicene, germanene and stanine, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures. 87 (March) (2017) 228–232.

11. **Kazemlou V. Phirouznia A.,** Influence of compression strains on photon absorption of silicene and germanene, Superlattices and Microstructures. 128 (April) (2019) 23–29.

12. **Lebedeva O.S., Lebedev N.G., Lyapkosova I.A.,** Elastic conductivity of silicene and germanene nanoribbons, St. Petersburg State Polytechnical University Journal. Physics and Mathematics. 12 (4) (2019) 38–49.

13. Physics of graphene, Edited by Aoki H., Dresselhaus M.S. (Nanoscience and Technology), Springer International Publishing, 2014.

14. **Landau L.D., Lifshitz E.M.,** Theory of elasticity, 2nd ed., Course of theoretical physics, Vol. 7, Pergamon Press, Oxford, 1981.

15. **Lebedeva O.S., Lebedev N.G.,** The influence of the stretching and compression deformations on the piezoresistance of the carbon nanotubes and graphene nanoribbons, St. Petersburg State Polytechnical University Journal. Physics and Mathematics. (1(189)) (2014) 26–34 (in Russian).

16. **Izyumov Ju.A., Chashhin N.I., Alekseev D.S.,** Teorija sil'no korrelirovannyh sistem. Metod proizvodjashhego funkcionala [The theory of strongly correlated systems. Method of generating functional], Reguljarnaja i Haoticheskaja Dinamika Publ., Moscow, 2006 (in Russian).

17. **Lebedeva O.S., Lebedev N.G.,** The piezoresistive effect in doped single-walled carbon nanotubes in the "Hubbard-I" approach, St. Petersburg State Polytechnical University Journal. (2 (195)) (2014) 149–161 (in Russian).

18. **Stepanov N.F.,** Kvantovaya mekhanika i kvantovaya khimiya [Quantum mechanics and quantum chemistry], Mir and Moscow State University Publishing, Moscow, 2001 (in Russian).

19. **Lebedeva O.S., Lebedev N.G., Lyapkosova I.A.,** The effect of isomorphic impurities on the elastic conductivity of Dirac structures, Journal of Physics: Condensed Matter. 32 (14) (2020) 145301.

20. **Bir G.L., Pikus G.E.,** Symmetry and strain-induced effects in semiconductors, John Wiley & Sons, Inc., New-York, 1974.

21. **Kvasnikov I.A.,** Termodinamika i statisticheskaja fizika. T. 4: Kvantovaja statistika [Thermodynamics and statistical physics, in 4 Vols., Vol. 4: Quantum Statistics], KomKniga Publ., Moscow, 2005.

Received 17.04.2020, accepted 05.11.2020.

THE AUTHORS

LEBEDEVA Olga S.
Volgograd State University
100, University Ave., Volgograd, 400062, Russian Federation
lebedeva_os@volsu.ru

LEBEDEV Nikolay G.
Volgograd State University
100, University Ave., Volgograd, 400062, Russian Federation
nikolay.lebedev@volsu.ru

LYAPKOSOVA Irina A.
Volgograd State Agricultural University
26, University Ave., 400002 Volgograd, Russian Federation
lyapkosovao_irina@mail.ru

DOI: 10.18721/JPM.14102
УДК 538.945

ТОКОВЫЕ КОНФИГУРАЦИИ В ДЛИННОМ ДЖОЗЕФСОНОВСКОМ КОНТАКТЕ ВО ВНЕШНЕМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

М.А. Зеликман

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Санкт-Петербург, Российская Федерация

Рассмотрены токовые конфигурации в периодически модулированном длинном джозефсоновском контакте, находящемся во внешнем магнитном поле, для значений параметра пиннинга I больше и меньше критического (I_c). Показано, что при $I > I_c$ максимальное значение незатухающего тока определяется длиной контакта и не зависит от величины внешнего магнитного поля. В случае $I < I_c$ критический ток определяется значением магнитного поля $H_{\max}$, при котором вихри начинают заполнять всю длину контакта, и не зависит от длины контакта. При этом с ростом внешнего магнитного поля критическое значение тока снижается.

Ключевые слова: длинный джозефсоновский контакт, магнитное поле, незатухающий ток, вихри

Ссылка при цитировании: Зеликман М.А. Токовые конфигурации в длинном джозефсоновском контакте во внешнем магнитном поле // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 21–31. DOI: 10.18721/JPM.14102

CURRENT CONFIGURATIONS IN THE LONG JOSEPHSON CONTACT IN AN EXTERNAL MAGNETIC FIELD

M.A. Zelikman

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,
St. Petersburg, Russian Federation

Current configurations in a periodically modulated long Josephson contact located in an external magnetic field are considered for values of the pinning parameter I greater than and less than the critical one (I_c). It is shown that, if $I > I_c$, the maximum value of the non-quenching current is determined by the contact length and does not depend on the value of the external magnetic field. In the case $I < I_c$, the critical current is determined by the value of the magnetic field at which the vortices begin to fill the entire length of the contact, and does not depend on the length of the contact. At the same time, with the growth of the external magnetic field, the critical value of the current decreases.

Keywords: long Josephson contact, magnetic field, undimmed current, vortices

Citation: Zelikman M.A., Current configurations in the long Josephson contact in an external magnetic field, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 21–31. DOI: 10.18721/JPM.14102

Введение

Исследования последних лет заметно приблизили нас к сверхпроводимости при комнатных температурах [1, 2]. Поэтому еще большее значение приобрела проблема критических полей и токов, крайне важная при практическом использовании сверхпроводников. Для классических сверхпроводников эта проблема решается на базе уравнений Гинзбурга – Ландау. Высокотемпературные сверхпроводники (ВТСП) по большей части представляют собой гранулированные керамики. Они состоят из соприкасающихся гранул, между которыми находится диэлектрик. В местах контакта гранул между собой, возникают джозефсоновские переходы, которые являются нелинейными элементами, что затрудняет описание их свойств. Кроме того, макроструктура ВТСП представляет собой ячеистую среду, существование которой ведет к возникновению пиннинга вихрей. Эти усложнения исключают возможность использования уравнений Гинзбурга – Ландау для расчета токовых состояний в ВТСП. Приходится искать другие подходы к анализу токов в таких средах.

В последние годы внимание физиков привлекли длинные джозефсоновские контакты. С одной стороны, это связано с возможностью изготовления искусственных структур такого типа [3 – 5], на которых можно проверять теоретические предсказания. В настоящее время ведутся исследования подобных структур, в которых диэлектрик в слое между сверхпроводниками заменен ферромагнетиком [6]. Повышенный интерес к указанным структурам вызван еще и тем, что в них наблюдаются физические явления, свойственные объемным сверхпроводникам: выталкивание магнитного поля за счет приграничных мейснеровских токов, возникновение и взаимодействие вихрей, формирование решетки вихрей и т. п. Периодическое модулирование длинного джозефсоновского контакта позволяет исследовать и вопросы пиннинга вихрей, а также профиля магнитного поля, проникающего в контакт в виде вихрей. При этом математически задача намного проще, чем в объемном сверхпроводнике, и может быть решена точно. Поэтому исследованиям процессов в длинных джозефсоновских контактах посвящено значительное число работ [7 – 12]. Например, в работах [10, 11] рассмотрен периодически модулированный длинный контакт, помещенный в постоянное внешнее магнитное поле, параллельное плоскости контакта, в случае, когда полный ток через контакт равен нулю. Далее, в работе [12] рассчитано распределение токов в контакте при заданном полном токе в нулевом внешнем магнитном поле. Но во многих случаях внешнее поле не равно нулю, поэтому следует оценить его влияние на протекание сверхпроводящих токов, в частности на величину критического тока.

Целью настоящего исследования является анализ общего случая, когда во внешнее магнитное поле помещен длинный джозефсоновский контакт, через который протекает незатухающий сверхпроводящий ток.

Постановка задачи

Искусственный, длинный, периодически модулированный джозефсоновский контакт (ДПМДК) (рис. 1,*а*) представляет собой тонкий слой диэлектрика (плоскость xz) между двумя сверхпроводниками, пересеченный полосами диэлектрика толщиной $2l$ вдоль оси y и шириной d вдоль оси x; полосы параллельны друг другу, бесконечны вдоль оси z и периодически расположены по оси x, на расстоянии L друг от друга. Внешнее магнитное поле, а также оси вихрей направлены вдоль оси z. На рис. 1,*b* изображена структура искусственно созданного, периодически модулированного джозефсоновского контакта [3]. На участках между полосами величина скачка фазы φ между сторонами контакта медленно меняется по координате, в то время как при переходе через полосу она изменяется скачкообразно.

На рис. 1,*а* величина скачка фазы, усредненная по k-му участку между полосами, обозначена как φ_k. Пусть скачок фазы на ближайшем к границе контакта участке равен φ_1, и по мере продвижения внутрь длинного

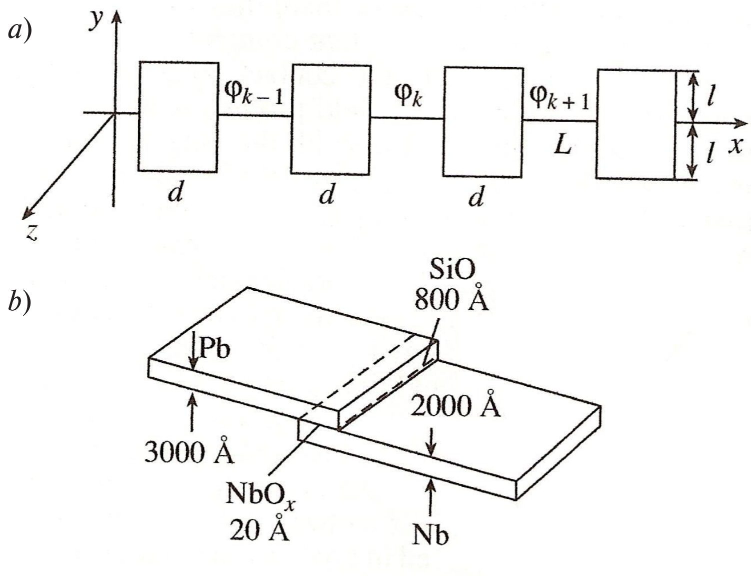


Рис. 1. Модель периодически модулированного джозефсоновского контакта (*a*) и пример структуры такого созданного контакта (*b*);
φ_k – величина скачка фазы, усредненная по k-му участку между полосами

контакта скачки фазы будут обозначены как φ_2, φ_3 и т. д. Распределение величин φ_k описывает установившееся токовое состояние.

Следует рассмотреть проникновение магнитного поля в представленную модель контакта при нулевом и ненулевом токах, а также процессы в отсутствие внешнего магнитного поля.

Проникновение магнитного поля в ДПМДК при нулевом полном токе

Рассмотрим сначала случай, когда полный ток через ДПМДК равен нулю. Важно учитывать, что при наличии пиннинга распределение скачков фазы и токов по контакту не будет однозначным. Причиной многозначности является очевидная «гистерезисность» ситуации: вид установившейся конфигурации распределения зависит от предыстории работы ДПМДК, т. е. от того, как контакт пришел к данному состоянию. Например, если сначала его внесли в сколь угодно малое поле и только потом охладили и перевели в сверхпроводящее состояние, то магнитные потоки будут пронизывать и внутренние ячейки контакта. Если же его внести в поле в сверхпроводящем состоянии, то при малых полях конфигурация будет мейсснеровской, т. е. поле проникнет только в узкий приграничный слой. Возникает огромное число различных вариантов.

Решаем задачу для случая адиабатического включения поля. Контакт уже находится в сверхпроводящем состоянии, а внешнее поле H_e медленно увеличивается от нулевого значения.

Из равенства тока нулю и соображений симметрии можно сделать вывод, что вблизи обоих краев контакта токи распределены одинаково, но текут в разных направлениях.

При малых значениях H_e, у границы контакта возникает мейсснеровская конфигурация, когда величины φ_k убывают с ростом номера и равны нулю в глубине контакта. При этом магнитное поле, созданное приграничными токами, полностью компенсирует внешнее поле в глубине контакта. Такая ситуация может иметь место, пока внешнее поле не достигнет некоторого максимально возможного значения H_s, причем вплоть до него мейсснеровское состояние будет устойчивым [13]. В сверхпроводниках первого рода предел указанного состояния определяется равенством энергий нормального и сверхпроводящего состояний с учетом энергии экранирующих токов. Если внешнее поле больше H_s, то образец переходит в нормальное состояние. В рассматриваемом случае джозефсоновского контакта эти соображения неприменимы.

Представляет интерес выяснить поведение контакта, когда внешнее поле превысит величину H_s и мейсснеровское состояние невозможно. Как известно, при отсутствии пиннинга, в контакте установилась бы периодическая последовательность вихрей. В данном случае необходимо учесть существование пиннинга. В работах [10 – 12] показано (в том числе нами), что характер вихревой картины зависит от величины так называемого параметра пиннинга [12]:

$$I = 4\pi\mu_0 j_c Lld/\Phi_0 ,$$

где j_c, А/м², – критическая плотность тока каждого точечного джозефсоновского перехода; Φ_0, Вб, – квант магнитного потока; смысл геометрических величин L, l, d ясен из рис. 1.

При малых значениях параметра пиннинга I ситуация такая же, как при нулевом пиннинге, т. е. при превышении внешним полем некоторого значения $H_{\max} > H_s$ вихри заполняют сразу весь контакт от его границы до бесконечности. Это аналогично ситуации в сверхпроводниках II рода. При больших же значениях параметра I вихри с ростом поля постепенно продвигаются от границы внутрь контакта, а магнитное поле в глубине контакта остается равным нулю, т. е. ситуация аналогична поведению сверхпроводника III рода. В работе [12] на базе подхода, развитого в нелинейной физике [13, 14], показано, что существует критическое значение параметра пиннинга I_c = 0,9716, разделяющее эти два режима.

В работах [10, 11] нами был рассчитан профиль магнитного поля внутри контакта, основанный на анализе непрерывного видоизменения конфигурации, протекающего в направлении уменьшения ее энергии (точнее, потенциала Гиббса). Процесс перестройки конфигурации рассмотрен как непрерывная трансформация распределения токов и скачков фазы. При постепенном увеличении внешнего магнитного поля от нуля, происходит непрерывная трансформация устанавливающегося распределения токов. При этом в каких-то участках конфигурации токи убывают, в каких-то возрастают, т. е. вихри не ведут себя как жесткие частицы, «заталкиваемые» полем внутрь, а как бы «втекают» внутрь контакта.

Предложенный в работах [10, 11] алгоритм позволил найти ту конфигурацию, в которую переходит мейсснеровское состояние при малом превышении внешним полем значения H_s, и проследить ее развитие при дальнейшем увеличении поля. Этот метод одновременно дает ответ и на вопрос об устойчивости состояния.

Расчеты показали, что существует критическое значение параметра пиннинга I_c в интервале 0,95 – 1,00, разделяющее два возможных режима проникновения магнитного поля в контакт. Этот результат коррелирует с критическим значением параметра пиннинга I_c = 0,9716, найденным в работах [12 – 14]. В случае $I > I_c$, при любом значении внешнего поля возникает приграничная токовая структура конечной длины, полностью компенсирующая внешнее поле в глубине контакта. В нашей статье [10] проведено подробное исследование этого случая. В глубине контакта магнитное поле равно нулю, у границы оно уменьшается с глубиной почти линейно, с некоторыми более или менее выраженными осцилляциями. Значения коэффициента наклона представляют собой рациональные дроби и остаются постоянными в конечных интервалах параметра I. При выходе значения I за верхнюю границу такого интервала коэффициент наклона скачком возрастает и принимает значение другой рациональной дроби.

Как было отмечено выше, в рассматриваемом случае нулевого полного тока через контакт, около обоих его краев токи распределены одинаково, но текут в противоположных направлениях. При этом создаваемые

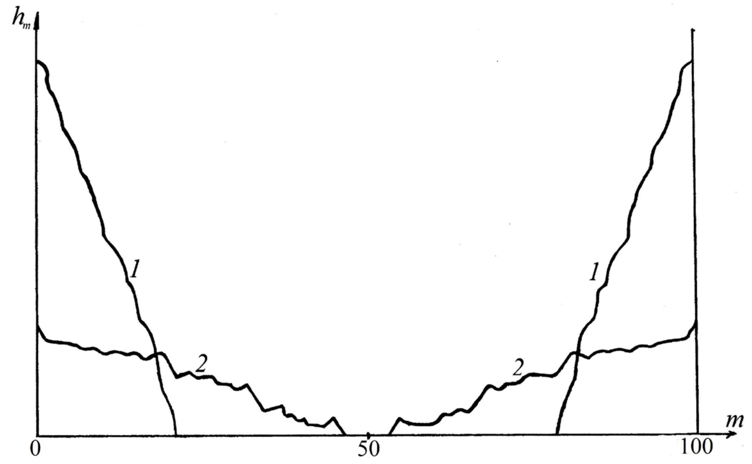


Рис. 2. Профили магнитного поля внутри длинного (m = 100) контакта для двух значений параметра пиннинга: 5 и 2 (кривые *1* и *2* соответственно) при некоторых величинах внешнего магнитного поля (m – номер ячейки)

магнитные поля в точках, симметричных относительно середины контакта, одинаковы по величине и направлению.

Введем нормированную напряженность внешнего поля $h = H_e / H_0$, где $H_0 = \Phi_0/\mu_0 S$ – значение внешнего поля, при котором через каждую ячейку площадью S проходит один квант магнитного потока Φ_0. Тогда магнитное поле внутри m-й ячейки можно вычислить по формуле [10]:

$$h_m = \left(\varphi_{m+1} - \varphi_m\right)/2\pi.$$

На рис. 2 приведены рельефы магнитного поля внутри контакта для разных значений параметра I при некоторых величинах внешнего нормированного магнитного поля h. Расчет проводился в предположении, что правая и левая структуры не пересекаются, т. е. длина контакта считалась бесконечной. Если же она такова, что правый и левый графики пересекаются, то должен быть сделан перерасчет, учитывающий конечность длины. Но в любом случае картина будет симметрична, и система вихрей будет находиться в покое.

Если же $I < I_c$, то приграничная структура может существовать лишь до значения внешнего поля $H_{\max}(I)$. При $H_e > H_{\max}$ длина приграничной конфигурации, рассчитанная методом, использованным в работе [10] (т. е. в предположении о бесконечной длине контакта), все время растет в процессе расчета. Это означает, что процесс расчета может длиться бесконечно, а поле проникает в контакт на бесконечную глубину. Для детального анализа случая $I < I_c$ указанный метод мы использовали в работе [11] для варианта ограниченной длины контакта, поскольку две симметричные последовательности вихрей, идущие с разных концов контакта, должны остановиться, встретившись в его центре.

Как и при $I > I_c$, картина во всех случаях будет симметрична и система вихрей будет находиться в покое.

Ненулевой ток в отсутствие внешнего магнитного поля

При нулевом внешнем магнитном поле из соображений симметрии можно утверждать, что вблизи его обоих краев токи распределены одинаково и текут в одном направлении. Из теоремы о циркуляции напряженности магнитного поля следует, что поле снаружи выражается как

$$H = J/2b,$$

где J, А, – полный ток через контакт; b, м, – длина контакта вдоль оси z.

Так же, как в разделе «Проникновение магнитного поля в ДПМДК при нулевом полном токе», следует определить конфигурацию распределения скачков фазы в приграничной области, минимизирующую потенциал Гиббса, при заданных полях по обе стороны от контакта (такой расчет см. в указанном разделе). Критическое значение параметра пиннинга, разделяющее режимы, – то же самое, т. е. $I_c = 0{,}9716$. Различие в данном случае состоит в том, что заданным параметром выступает не внешнее магнитное поле, а полный ток в контакте. Если значение параметра пиннинга меньше критического ($I < I_c$), то приграничная структура может существовать лишь до значения внешнего поля $H_{\max}(I)$, т. е. до величины полного тока

$$J_{\max}\left(I\right) = 2b\,H_{\max}\left(I\right).$$

Однако главное отличие исследуемого здесь варианта от такового в указанном выше разделе состоит в том, что вихри у разных краев контакта имеют противоположные ориентации. До тех пор, пока длина контакта настолько велика, что эти вихревые картины не пересекаются (либо при $I > I_c$, либо при $I < I_c$ и $J < J_{\max}$), вся конфигурация будет статичной, движения вихрей отсутствуют. Но если длина контакта такова, что картины накладываются друг на друга, то в области перекрытия вихри противоположных ориентаций будут притягиваться друг к другу и «аннигилировать», т. е. взаимно уничтожаться. При этом вихри, вносившие за счет пиннинга свой вклад в силу, удерживающую вихревую конфигурацию, исчезают, и картина перестает быть статичной. Новые вихри приходят в область перекрытия, и с ними происходит то же самое. При движении вихрей энергия переходит в тепло и токи перестают быть незатухающими.

То же самое будет происходить, если $I < I_c$, но $J > J_{\max}$, когда вихревые последовательности с обеих сторон стремятся заполнить всю длину контакта. Эти последовательности имеют противоположные ориентации, поэтому взаимно уничтожаются. На их место приходят новые вихри, переводя энергию в тепло при своем движении.

Контакт во внешнем магнитном поле при ненулевом токе

Рассмотрим общий случай. Контакт находится во внешнем магнитном поле, которое было включено адиабатически, т. е. напряженность поля росла медленно и монотонно от нуля до H_e. После этого через контакт пропускают внешний ток, который медленно и монотонно увеличивается от нуля до J. Суммарное поле вне контакта с одной стороны (для определенности считаем ее правой) равно $H_e + J/2b$, а с другой $H_e - J/2b$. Будем называть ориентацию вихрей в правой структуре положительной, а обратную – отрицательной. Снова стоит задача расчета конфигураций в приграничных областях.

Случай $I > I_c$. Введем безразмерные параметры

$$j = \frac{J}{bH_0},\ l_{cont} = \frac{L_{cont}}{L+d},$$

где l_{cont} – длина контакта, выраженная количеством ячеек.

На рис. 3 изображены профили магнитного поля внутри контакта для случая, когда его длина достаточно велика, так что до включения тока j приграничные структуры (изображены пунктиром) не пересекаются. С ростом тока j ситуации внутри контакта около его разных краев становятся принципиально разными. У правого края, около которого поле равно $H_e + J/2b$, конфигурация соответствует минимуму потенциала Гиббса при адиабатическом увеличении магнитного поля от H_e до $H_e + J/2b$, т. е. поле линейно убывает с глубиной внутрь контакта, начиная со значения $H_e + J/2b$. Длина этой приграничной структуры равна $(h + j/2)/k$ ячеек. У другого края поле уменьшалось от величины H_e до $H_e - J/2b$, т. е. имел место обратный ход внешнего магнитного поля. Поэтому, вследствие гистерезиса, рельеф уже не является линейным.

Возможны следующие случаи.

1. Если $j > 4h$, то $h - j/2 < -h$. При этом

a)

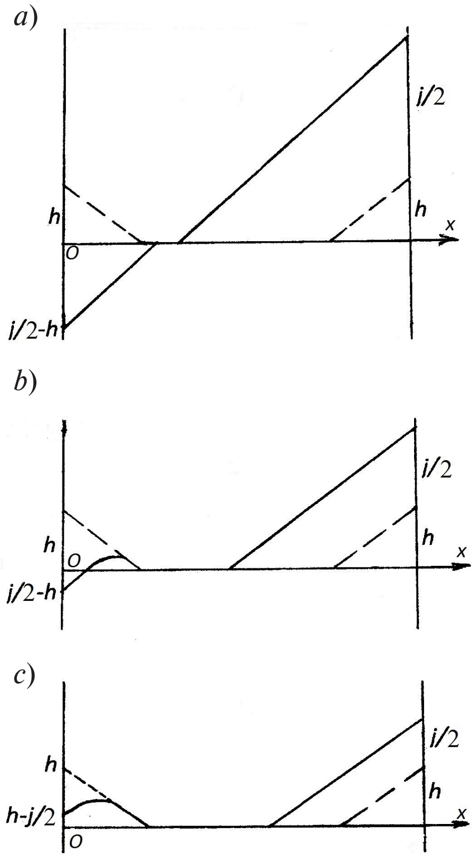


Рис. 3. Профили магнитного поля внутри длинного контакта при заданном внешнем поле h и разных значениях тока j: $j > 4h$ (a), $4h > j > 2h$ (b), $j < 2h$ (c). Пунктиром показаны профили поля до включения тока ($j = 0$)

поле преодолевает пиннинг уже существовавших у левого края вихрей, в результате чего у левого края устанавливается вихревая структура из противоположно ориентированных вихрей (рис. 3,a). При этом профиль поля у левого края контакта также линейный, его длина равна $(j/2 - h)/k$. Если длина контакта l_{cont} меньше суммы длин приграничных структур, а именно

$$\left(h + j/2\right)/k + \left(j/2 - h\right)/k = j/k,$$

то в области их пересечения противоположно ориентированные вихри уничтожают друг друга, на их место приходят новые, при движении вихрей энергия переходит в тепло и токи перестают быть незатухающими.

2. Если $2h < j < 4h$, то вихри, ближайшие к левому краю контакта, ориентированы отрицательно, а более удаленные – положительно (рис. 3,b). При этом длина отрицательной части структуры будет равна $(j/2 - h)/k$ ячеек. С ростом тока правая структура расширяется, но взаимоуничтожения вихрей на границе с левой не будет, так как они имеют одинаковую ориентацию. Левая конфигурация будет сжиматься под давлением правой, и принадлежащие ей вихри положительной ориентации будут двигаться влево и аннигилировать с отрицательными. Если длина контакта меньше суммы длин, т. е.

$$\left(h + j/2\right)/k + \left(j/2 - h\right)/k = j/k,$$

то все положительные вихри левой структуры уничтожатся и отрицательные вихри левой структуры будут аннигилировать с положительными вихрями правой. Снова получаем ситуацию, рассмотренную в пункте 1.

Обобщая случаи 1 и 2, приходим к выводу, что непрерывное движение вихрей с переходом энергии в тепло происходит при выполнении условий $j > kl_{cont}$, $j > 2h$, которые можно записать в виде

$$j > \max\left\{kl_{cont},\, 2h\right\}. \qquad (1)$$

Этот результат включает в себя условие движения вихревой картины $j > kl_{cont}$, полученное в работе [12] при $h = 0$.

3. Если $h > j/2$ (рис. 3,c), то обе вихревые структуры ориентированы одинаково, поэтому взаимоуничтожения вихрей при наложении не будет. Но возникает вопрос, будет ли картина стационарной. Если краевые структуры пересекаются при нулевом токе, то силы, действующие на точку их пересечения с обеих сторон, будут равны. С ростом тока сила со стороны правого края растет, а со стороны левого падает, так как слева структура получена при снижении напряженности магнитного поля. Поэтому правая структура будет двигать левую влево. При этом левая конфигурация сожмется до такого состояния, при котором сила ее противодействия

максимальна. Это состояние соответствует линейной зависимости магнитного поля от глубины с тем же коэффициентом k.

В итоге у обоих краев устанавливаются приграничные профили магнитного поля конечной длины. Сумма длин приграничных структур равна

$$(h + j/2)/k + \\ + |h - j/2|/k = 2h/k \text{ ячеек.}$$

На рис. 4 изображены различные возможные случаи. В случае, показанном на рис. 4,*a*, структуры не пересекаются, ситуация стационарная. В случае, представленном на рис. 4,*b*, структуры *AFG* и *CMN* были бы в покое. Необходимо выяснить, будут ли в покое структуры *DBFG* и *BDMN*, а также достаточна ли сила, действующая на структуру *DBFG* со стороны *BDMN*, чтобы удержать ее в покое. Из равновесия *CMN* следует, что сила со стороны *BDMN* равна силе со стороны *CBD*, которая равна силе со стороны *ABD*. Последняя компенсирует силу со стороны *DBFG*, т. е. структура *DBFG* будет в покое. То же касается и структуры *BDMN*. Аналогичное рассмотрение показывает, что и в случае, показанном на рис. 4,*c*, структуры находятся в покое.

А в случае, изображенном на рис. 4,*d* (см. его описание ниже), равновесия нет, поэтому вихри движутся справа налево, при этом их энергия переходит в тепло.

Найдем соотношение параметров, при котором реализуется ситуация *d*):

$$FG = h + j/2,\ MN = h - j/2,$$
$$FP = FG - MN = j.$$

Из того факта, что $FP > RP$, следует, что $j > kl_{cont}$. Учитывая, что $h > j/2$, придем к соотношению

$$kl_{cont} < j < 2h. \quad (2)$$

Объединив условия (1) и (2), получим условие нестационарности при $I > I_c$:

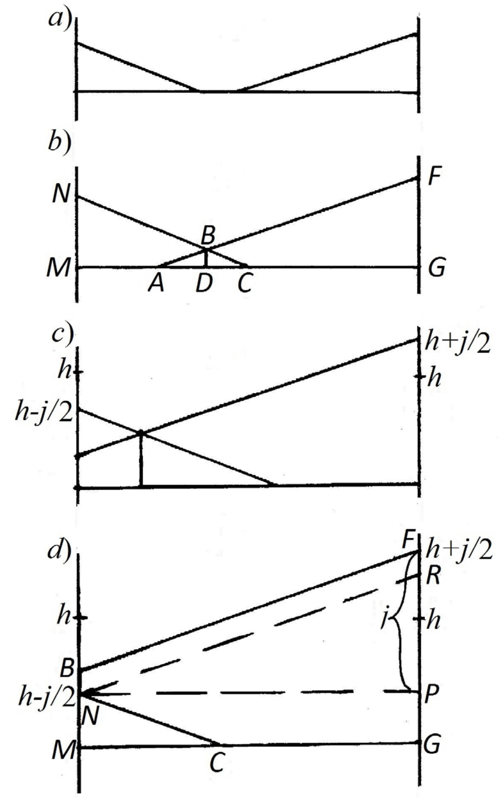


Рис. 4. Возможные профили нормированной напряженности магнитного поля в контакте. В случаях *a*, *b* и *c* структуры стационарны; в случае *d* возникает их движение справа налево (буквенные обозначения точек введены для удобства пояснений в тексте)

$$j > kl_{cont} \quad (3)$$

(при любом h).

Случай $I < I_c$. При указанном условии также могут быть разные ситуации.

Если $h + j/2 < h_s$, то с обеих сторон выстраиваются мейсснеровские конфигурации. При не слишком малой длине контакта они не перекрываются и картина стационарна.

Если же $h + j/2 > h_{max}$, то у правого края контакта возникает последовательность вихрей, стремящаяся захватить всю длину контакта. Левая структура может представлять собой либо мейсснеровскую конфигурацию, либо конечную приграничную структуру, либо цепочку вихрей, также стремящуюся захватить весь контакт. Но, поскольку напряженность поля у правого края больше, чем у левого, то левая структура не может противодействовать напору справа, вихри движутся справа налево, при этом их энергия переходит в тепло.

Еще в одном случае, когда одновременно выполнены условия

$$h_s < h + j/2 < h_{\max},$$

$$h_s < h - j/2 < h_{\max},$$

с обеих сторон будут структуры конечной длины.

Но их длины не пропорциональны значениям поля у границы, как это было в случае $I > I_c$. Можно анализировать поведение приграничных структур в зависимости от соотношения длин структур и длины контакта. Однако поскольку диапазон магнитных полей от h_s до $h_{\max}$ весьма мал, то с определенной степенью уверенности можно пренебречь этой ситуацией и утверждать, что картина перестает быть стационарной, как только большее поле $H_e + J/2b$ превысит значение $H_{\max}$, т. е. $h + j/2 > h_{\max}$.

В работе [12] при $h = 0$ условие движения вихрей имеет вид $j > 2h_{\max}$, что является частным результатом полученной здесь формулы.

Аналогичное рассмотрение с некоторыми допущениями можно провести в случае трехмерной джозефсоновской среды [15].

Заключение

Проведен анализ токовых конфигураций в периодически модулированном длинном джозефсоновском контакте, находящемся во внешнем магнитном поле, для значений параметра пиннинга I больше и меньше критического значения I_c. Рассмотрение базируется на результатах анализа непрерывного видоизменения токовой конфигурации, протекающего в направлении уменьшения ее энергии (точнее, потенциала Гиббса). Процесс перестройки конфигурации рассматривается как непрерывная трансформация распределения токов и скачков фазы.

Показано, что при $I > I_c$ максимальное значение незатухающего тока определяется длиной контакта и не зависит от величины внешнего магнитного поля. В случае $I < I_c$ критический ток не зависит от длины контакта и определяется значением магнитного поля $H_{\max}$, при котором вихри начинают заполнять всю длину контакта. При этом с ростом внешнего магнитного поля критическое значение тока снижается.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Drozdov A.P., Kong P.P., Minkov V.S. et al.** Superconductivity at 250 K in lanthanum hydride under high pressures // Nature. 2019. Vol. 569. No. 7757. Pp. 528–531.

2. **Somayazulu M., Ahart M., Mishra A.K., Geballe Z.M., Baldini M., Meng Y., Struzhkin V.V., Hemley R.J.** Evidence for superconductivity above 260 K in lanthanum superhydride at megabar pressures // Physical Review Letters. 2019. Vol. 122. No. 2. P. 027001.

3. **Голубов А.А., Серпученко И.Л., Устинов А.В.** Динамика джозефсоновского флюксона в длинном контакте с неоднородностями // Журнал экспериментальной и теоретической физики. 1988. Т. 94. № 6 (12). С. 297–311.

4. **Парамонов М.Е., Голдобин Э.Б., Кошелец В.П.** Измерение ширины линии джозефсоновского генератора с инжекторами // Журнал радиоэлектроники. 2016. № 7. С. 1684–1719.

5. **Revin L.S., Pankratov A.L., Masterov D.V., Pavlov S.A., Chiginev A.V., Skorokhodov E.V.** Features of long YBCO Josephson junctions fabricated by preliminary topology mask // IEEE Transactions on Applied Superconductivity. 2018. Vol. 28. No. 7. P. 1100505.

6. **Golovchanskiy I.A., Abramov N.N., Stolyarov V.S., Emelyanova O.V., Golubov A.A., Ustinov A.V., Ryazanov V.V.** Ferromagnetic resonance with long Josephson junction // Superconductor Science and Technology. 2017. Vol. 30. No. 5. P. 054005.

7. **Revin L.S., Pankratov A.L., Chiginev A.V., Masterov D.V., Parafin A.E., Pavlov S.A.** Asymme-

try of the velocity-matching steps in YBCO long Josephson junctions // Superconductor Science and Technology. 2018. Vol. 31. No. 4. P. 045002.

8. **Руденко Э.М., Короташ И.В., Краковный А.А., Белоголовский М.А.** Нелинейная динамика квантовых вихрей в длинных джозефсоновских переходах // Металлофизика и новейшие технологии. 2018. Т. 40. № 10. С. 1273–1282 (на украинском языке).

9. **Nashaat M., Botha A.T., Shukrunov Yu.M.** Devil's staircases in the IV characteristics of superconductor/ferromagnetic/superconductor Josephson junctions // Physical Review. B. Vol. 97. No. 22. P. 224514.

10. **Зеликман М.А.** Проникновение магнитного поля в длинный периодически модулированный джозефсоновский контакт // Журнал технической физики. 2009. Т. 79. № 2. С. 36–42.

11. **Зеликман М.А.** Установление квазиоднородной последовательности вихрей в периодически модулированном джозефсоновском контакте конечной длины // Журнал технической физики. 2009. Т. 79. № 12. С. 19–25.

12. **Dorogovtzev S.N., Samuhin A.N.** Magnetic flux penetration and critical current in long periodically modulated Josephson junction // Europhysics Letters. 1994. Vol. 25. No. 9. Pp. 693–698.

13. **Meiss J.D.** Symplectic maps, variational principles, and transport // Reviews of Modern Physics.1992. Vol. 64. No. 3. Pp. 795–848.

14. **Заславский Г.М., Сагдеев Р.З.** Введение в нелинейную физику: от маятника до турбулентности и хаоса. М.: Наука, 1988. 368 с.

15. **Зеликман М.А.** Развитие неустойчивости мейсснеровского состояния в трехмерной упорядоченной джозефсоновской среде // Журнал технической физики. 2009. Т. 79. № 9. С. 47–57.

Статья поступила в редакцию 09.09.2020, принята к публикации 30.10.2020.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРЕ

ЗЕЛИКМАН Марк Аронович – *доктор физико-математических наук, профессор кафедры физики Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

marzelik@mail.ru

REFERENCES

1. **Drozdov A.P., Kong P.P., Minkov V.S., et al.,** Superconductivity at 250 K in lanthanum hydride under high pressures, Nature. 569 (7757) (2019) 528–531.

2. **Somayazulu M., Ahart M., Mishra A.K., et al.,** Evidence for superconductivity above 260 K in lanthanum superhydride at megabar pressures, Physical Review Letters. 122 (2) (2019) 027001.

3. **Golubov A.A., Serpuchenko I. L., Ustinov A.V.,** Dynamics of a Josephson fluxon in a long junction with inhomogeneities: theory and experiment, Sov. Phys. JETP. 67 (6) (1988) 1256–1264.

4. **Paramonov M.E., Goldobin E.B., Koshelets V.P.,** Measurements of the linewidth of Josephson junction with injectors, Journal of Radio Electronics. (7) (2016) 1684–1719 (in Russian).

5. **Revin L.S., Pankratov A.L., Masterov D.V., et al.,** Features of long YBCO Josephson junctions fabricated by preliminary topology mask, IEEE Transactions on Applied Superconductivity. 28 (7) (2018) 1100505.

6. **Golovchanskiy I.A., Abramov N.N., Stolyarov V.S., et al.,** Ferromagnetic resonance with long Josephson junction, Superconductor Science and Technology. 30 (5) (2017) 054005.

7. **Revin L.S., Pankratov A.L., Chiginev A.V., et al.,** Asymmetry of the velocity-matching steps in YBCO long Josephson junctions, Superconductor Science and Technology. 31 (4) (2018) 045002.

8. **Rudenko E.M., Korotash I.V., Krakovnyy A.O., Bilogolovskyy M.O.,** Nonlinear dynamics of quantum vortices in long Josephson junctions,

Metallofiz. Noveishie Tekhnol. 40 (10) (2018) 1273–1282 (in Ukrainian).

9. **Nashaat M., Botha A.T., Shukrunov Yu.M.,** Devil's staircases in the IV characteristics of superconductor/ferromagnetic/superconductor Josephson junctions, Physical Review. B. 97 (22) (2018) 224514.

10. **Zelikman M.A.,** Penetration of magnetic field into a long periodically modulated Josephson contact, Technical Physics. 54 (2) (2009) 197–203.

11. **Zelikman M.A.,** Formation of a quasi-uniform sequence of vortices in a periodically modulated finite-length Josephson contact, Technical Physics. 54 (12) (2009) 1742.

12. **Dorogovtzev S.N., Samuhin A.N.,** Magnetic flux penetration and critical current in long periodically modulated Josephson junction, Europhysics Letters. 25 (9) (1994) 693–698.

13. **Meiss J.D.,** Symplectic maps, variational principles, and transport, Reviews of Modern Physics. 64 (3) (1992) 795–848.

14. **Sagdeev R.Z., Usikov D,A., Zaslavsky G.M.,** Nonlinear physics: From the pendium to turbulence and chaos, Harwood Academic Publishers, New Jersey, USA, 1988.

15. **Zelikman M.A.,** Development of the Meissner state instability in an ordered 3D Josephson medium, Technical Physics. 54 (9) (2009) 1290–1300.

Received 09.09.2020, accepted 30.10.2020.

THE AUTHOR

ZELIKMAN Mark A.

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University

29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation

marzelik@mail.ru

DOI: 10.18721/JPM.14103
УДК 539.3, 537.226.4

МИКРОСТРУКТУРНАЯ МОДЕЛЬ СЕГНЕТОЭЛЕКТРОУПРУГОГО МАТЕРИАЛА С УЧЕТОМ ЭВОЛЮЦИИ ДЕФЕКТОВ

А.С. Семенов

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Санкт-Петербург, Российская Федерация

Для описания гистерезисного поведения сегнетоэлектриков/сегнетоэластиков в условиях сложного многоосного комбинированного электрического и/или механического нагружения предложена термодинамически согласованная микроструктурная модель сегнетоэлектро-упругого материала с учетом наличия и эволюции полярных точечных дефектов. Модель также учитывает многофазный состав, анизотропию свойств, доменную структуру и диссипативный характер движения доменных стенок. Предложена линейная теория эволюции заряженных точечных дефектов на основе выбора свободной энергии дефектов в виде квадратичной формы вектора поляризации и тензора деформации дефектов, уравнения эволюции которых получены на основе диссипативного неравенства. Установлена зависимость величины смещения петель гистерезиса от параметров свободной энергии дефектов. Сравнение результатов расчетов с экспериментальными кривыми диэлектрического, механического и электромеханического гистерезисов для легированных акцепторными добавками поликристаллической пьезокерамики PZT PIC-151, поликристаллического $BaTiO_3$, монокристаллических PMN-PZT и KTS показало хорошее совпадение.

Ключевые слова: поликристаллическая пьезокерамика, точечный дефект, определяющее уравнение, гистерезис, конечно-элементная гомогенизация, моделирование

Ссылка при цитировании: Семенов А.С. Микроструктурная модель сегнетоэлектроупругого материала с учетом эволюции дефектов // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 32–57. DOI: 10.18721/JPM.14103

A MICROSTRUCTURAL MODEL OF FERROELECTROELASTIC MATERIAL WITH TAKING INTO ACCOUNT THE DEFECTS' EVOLUTION

A.S. Semenov

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,
St. Petersburg, Russian Federation

For the description of the hysteresis behavior of ferroelectrics/ferroelastics under multiaxial combined electrical and/or mechanical loading, a thermodynamically consistent microstructural model of ferroelectroelastic material is proposed taking into account the presence and evolution of polar point defects. The model also takes into account multiphase composition, anisotropy of properties, domain structure, and dissipative motion of domain walls. The linear theory of the charged point defects evolution is proposed based on the free energy of defects in the quadratic form of the polarization vector and strain tensor of defects. The dependence of the hysteresis loop shift (due to internal field bias) on parameters of the free energy of defects is shown. Comparison of computation results with experimental curves of dielectric, mechanical, and electromechanical hysteresis for polycrystalline piezoelectric PZT PIC-151, $BaTiO_3$, single-crystal PMN-PZT and KTS doped with acceptor additives, showed a good agreement.

Keywords: polycrystalline piezoceramics, point defect, constitutive equation, hysteresis, finite element homogenization

Citation: Semenov A.S., A microstructural model of ferroelectroelastic material with taking into account the defects' evolution, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 32–57. DOI: 10.18721/JPM.14103

Введение

Сегнетопьезокерамические (сегнетоэлектроупругие) материалы [1 – 3] являются наиболее ярким примером активных (смарт-) материалов и находят широкое практическое применение в качестве рабочих элементов топливных инжекторов, нанопозиционеров, микромоторов, приводов сканирующих туннельных микроскопов, гасителей вибраций, пьезотрансформаторов, элементов памяти и др. Для оценки точности позиционирования, прочности и долговечности рассматриваемых устройств возникает необходимость разработки уточненных моделей сегнетоэлектроупругого материала [2, 4 – 12].

Точечные дефекты кристаллической решетки оказывают значительное влияние на процессы формирования и движения доменных границ, размеры и форму гистерезисных кривых, время переключения, диэлектрические, пьезоэлектрические и механические свойства [1, 3, 13 – 16], что подтверждается многочисленными экспериментами, выполненными на титанате бария $BaTiO_3$ [15, 17, 18], PZT [19 – 21], PLZT [22], PMS-PZT [23], PMN-PZT [24], BNT–BT [25], KNN [26], TGS [1, 13], KTS [27]. Однако в современных моделях сегнетоэлектроупругого материала не проводится непосредственный учет наличия дефектов и их эволюции.

Точечные дефекты также оказывают существенное влияние на процессы деградации электромеханических свойств [16], возникающие либо в результате циклического электрического и/или механического воздействия (усталость), либо с течением времени при отсутствии внешней механической и электрической нагрузки (старение). Основные механизмы усталости и старения имеют аналогичный характер и непосредственно связаны с наличием и эволюцией точечных дефектов.

Дефекты кристаллической решетки могут быть как собственными, так и созданными искусственно в процессе выращивания кристалла с помощью введения акцепторных или донорных легирующих примесей, а также путем воздействия на кристалл высокоэнергетическими частицами (включая облучение рентгеновскими и гамма-лучами, нейтронами и электронами) [13]. Наличие пространственно упорядоченных полярных дефектов заданной концентрации позволяет создать в кристалле внутреннее смещающее электрическое поле, способствующее сохранению устойчивого монодоменного состояния [13], достичь больших изменений деформации при малом изменении электрического поля [28]. Таким образом открывается возможность целенаправленного изменения электромеханических свойств сегнетоэлектроупругих материалов путем контролируемого создания дефектов структуры, представляющего один из способов доменной инженерии как разновидности технологического инжиниринга.

В связи с этим представляют значительный интерес экспериментальные и теоретические исследования влияния дефектов на процессы переключения и движение доменных стенок.

Целью данной работы является разработка и верификация термодинамически согласованной микроструктурной модели сегнетоэлектроупругого материала с учетом эволюции полярных точечных дефектов, позволяющей описать гистерезисное поведение моно- и поликристаллических сегнетоэлектроупругих материалов в условиях произвольных программ сложного многоосного комбинированного электрического и/или механического нагружения.

В работе [11] нами рассматривался учет неизменяющихся точечных дефектов в рамках микроструктурной модели. В данном исследовании представлено дальнейшее развитие этого подхода, связанное с учетом возможности изменения ориентации и концентрации точечных дипольных дефектов и его влияние на процессы переключения.

Модель без учета дефектов

Склерономная микроструктурная модель с учетом диссипативного характера движения доменных стенок для монокристалла была первоначально предложена в статье [5] на основе аналогии с моделью пластичности кристаллов и получила дальнейшее развитие в работах [6 – 12]. Модель имеет строгое термодинамическое обоснование и экспериментальное подтверждение [5, 7 – 10].

Формулировка определяющих уравнений ограничена инфинитезимальным изотермическим случаем. Предполагается, что тензор деформации $\boldsymbol{\varepsilon}$ и вектор электрической индукции $\mathbf{D}$ допускают декомпозицию в виде суммы линейных (обратимых) ($\boldsymbol{\varepsilon}^l$, $\mathbf{D}^l$) и остаточных (аналог пластических) ($\boldsymbol{\varepsilon}^r$, $\mathbf{P}^r$) составляющих:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}^l + \boldsymbol{\varepsilon}^r, \tag{1}$$

$$\mathbf{D} = \mathbf{D}^l + \mathbf{P}^r. \tag{2}$$

Для обратимых составляющих справедливы линейные соотношения, соответствующие линейному пьезоэлектрическому материалу:

$$\begin{cases} \boldsymbol{\varepsilon}^l = \boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^r = {}^4\mathbf{S}^E \cdot\cdot\, \boldsymbol{\sigma} + {}^3\mathbf{d}^T \cdot \mathbf{E}, \\ \mathbf{D}^l = \mathbf{D} - \mathbf{P}^r = {}^3\mathbf{d} \cdot\cdot\, \boldsymbol{\sigma} + \boldsymbol{\kappa}^\sigma \cdot \mathbf{E}. \end{cases} \tag{3}$$

Эти соотношения допускают следующую обращенную форму:

$$\begin{cases} \boldsymbol{\sigma} = {}^4\mathbf{C}^D \cdot\cdot \left(\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^r\right) - {}^3\mathbf{h}^T \cdot \left(\mathbf{D} - \mathbf{P}^r\right), \\ \mathbf{E} = -{}^3\mathbf{h} \cdot\cdot \left(\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^r\right) + \boldsymbol{\beta}^\varepsilon \cdot \left(\mathbf{D} - \mathbf{P}^r\right), \end{cases} \tag{4}$$

где ${}^4\mathbf{S}^E$ – тензор модулей упругой податливости кристаллита при постоянном электрическом поле (4-го ранга), ${}^3\mathbf{d}$ – тензор пьезоэлектрических модулей кристаллита (3-го ранга), $\boldsymbol{\kappa}^\sigma$ – тензор модулей диэлектрической проницаемости кристаллита при постоянных напряжениях (2-го ранга). Тензоры ${}^4\mathbf{C}^D$, ${}^3\mathbf{h}^T$, $\boldsymbol{\beta}^\varepsilon$ определяются на основе тензоров ${}^4\mathbf{S}^E$, ${}^3\mathbf{d}^T$, $\boldsymbol{\kappa}^\sigma$ путем инверсии блочной матрицы.

Процессы необратимого деформирования и спонтанной поляризации пьезокерамики связаны с возможностью скачкообразного перемещения нецентрально-симметричных атомов кристаллической решетки. В тетрагональном кристалле реализуется $N = 6$ ориентаций спонтанной поляризации $\langle 001 \rangle$ (вдоль положительных и отрицательных направлений трех кристаллографических осей), соответствующих шести возможным вариантам доменов и

$$M = N\,(N - 1) = 30$$

системам переключения.

В ромбоэдрическом монокристалле реализуется $N = 8$ ориентаций спонтанной поляризации $\langle 111 \rangle$ (вдоль направлений четырех главных диагоналей кристаллической ячейки), соответствующих 8 возможным вариантам доменов и 56 системам переключения. В орторомбическом монокристалле реализуется $N = 12$ ориентаций спонтанной поляризации $\langle 011 \rangle$ (вдоль диагоналей граней кристаллической ячейки), соответствующих 12 возможным вариантам доменов и 132 системам переключения. Тензор остаточной деформации и вектор остаточной поляризации кристаллита могут быть записаны в этом случае как сумма вкладов отдельных доменов:

$$\boldsymbol{\varepsilon}^r = \sum_{I=1}^{N} c_I\, \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^r_I, \tag{5}$$

$$\mathbf{P}^r = \sum_{I=1}^{N} c_I\, \tilde{\mathbf{P}}^r_I, \tag{6}$$

где c_I – объемная доля (концентрация) I-го домена в монокристалле, удовлетворяющая ограничениям

$$0 \le c_I \le 1,\ \sum_{I=1}^{N} c_I = 1. \qquad (7)$$

В выражениях (5), (6) тильды используются для переменных, определяемых на уровне домена. Тензоры $\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^r$ и векторы $\tilde{\mathbf{P}}_I^r$ являются постоянными и определяются значениями спонтанной деформации и поляризации, а также геометрией элементарной ячейки.

Модули монокристалла ${}^4\mathbf{S}^E$, ${}^3\mathbf{d}$ и $\boldsymbol{\kappa}^\sigma$ вычисляются на основе модулей отдельных доменов ${}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E$, ${}^3\tilde{\mathbf{d}}_I$ и $\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma$ с помощью соотношений, аналогичных (5) и (6):

$$\begin{gathered} {}^4\mathbf{S}^E = \sum_{I=1}^{N} c_I\, {}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E,\ {}^3\mathbf{d} = \sum_{I=1}^{N} c_I\, {}^3\tilde{\mathbf{d}}_I, \\ \boldsymbol{\kappa}^\sigma = \sum_{I=1}^{N} c_I \tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma. \end{gathered} \qquad (8)$$

Структура тензоров ${}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E$, ${}^3\tilde{\mathbf{d}}_I$ и $\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma$ определяется типом кристаллической решетки. В рамках получившего широкое распространение на практике упрощенного подхода [5, 6, 9] с использованием изотропного приближения для тензора упругой податливости ${}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E$ и тензора модулей диэлектрической проницаемости $\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma$, тензоры, характеризующие линейное поведение домена пьезоэлектрического материала, могут быть представлены в виде:

$$\begin{gathered} {}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E = \tilde{s}_1 \mathbf{1}\otimes\mathbf{1} + \tilde{s}_2\left(\mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{1} + \mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right), \\ {}^3\tilde{\mathbf{d}}_I = \tilde{d}_{31}\left(\mathbf{p}\otimes\mathbf{1} - \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right) + \\ + \tilde{d}_{33}\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} + \\ + (1/2)\tilde{d}_{15}\left(\mathbf{1}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{p} - 2\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right), \\ \tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma = \tilde{\kappa}\mathbf{1}, \end{gathered} \qquad (9)$$

где использованы символы прямого и непрямого диадного умножения

$$\begin{gathered} \left(\mathbf{A}\otimes\mathbf{B}\right)_{ijkl} = A_{ij}B_{kl}, \\ \left(\mathbf{A}\overline{\otimes}\mathbf{B}\right)_{ijkl} = A_{ik}B_{jl}, \\ \left(\mathbf{A}\underline{\otimes}\mathbf{B}\right)_{ijkl} = A_{il}B_{jk}, \\ \left(\mathbf{A}\overline{\otimes}\mathbf{x}\right)_{ijk} = A_{ik}x_j, \end{gathered}$$

а $\mathbf{p} = \tilde{\mathbf{P}}_I^r / |\tilde{\mathbf{P}}_I^r|$ – единичный вектор направления поляризации домена.

Задание тензоров ${}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E$, ${}^3\tilde{\mathbf{d}}_I$ и $\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma$, в соответствии с равенствами (9), потребует определения 6 констант материала:

$$\begin{gathered} \tilde{s}_1 = -\tilde{\nu}\big/\tilde{E}, \\ \tilde{s}_2 = \left(1+\tilde{\nu}\right)\big/\tilde{E},\ \tilde{d}_{31},\ \tilde{d}_{33},\ \tilde{d}_{15},\ \tilde{\kappa}. \end{gathered}$$

В рамках модели трансверсально-изотропного материала [10], с нормалью к плоскости изотропии, определяемой направлением поляризации $\mathbf{p}$, выражения для линейных модулей ${}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E$, ${}^3\tilde{\mathbf{d}}_I$ и $\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma$ могут быть записаны в следующем виде [29]:

$$\begin{gathered} {}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E = \tilde{s}_1\mathbf{1}\otimes\mathbf{1} + \tilde{s}_2\left(\mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{1} + \mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right) + \\ + \tilde{s}_3\left(\mathbf{1}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{1}\right) + \\ + \tilde{s}_4\left(\mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right) + \\ + \tilde{s}_5\,\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}, \\ {}^3\tilde{\mathbf{d}}_I = \tilde{d}_{31}\left(\mathbf{p}\otimes\mathbf{1} - \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right) + \tilde{d}_{33}\,\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} + \\ + (1/2)\tilde{d}_{15}\left(\mathbf{1}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{p} - 2\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right), \\ \tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma = \tilde{\kappa}_{11}\left(\mathbf{1} - \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right) + \tilde{\kappa}_{33}\,\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}, \end{gathered} \qquad (10)$$

Для задания ${}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E$, ${}^3\tilde{\mathbf{d}}_I$ и $\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma$, в соответствии с формулами (10), требуется знание 10 констант материала:

$$\tilde{s}_1,\ \tilde{s}_2,\ \tilde{s}_3,\ \tilde{s}_4,\ \tilde{s}_5,\ \tilde{d}_{31},\ \tilde{d}_{33},\ \tilde{d}_{15},\ \tilde{\kappa}_{11},\ \tilde{\kappa}_{33}.$$

Скорость изменения концентрации I-го домена монокристалла выражается через суммирование по всем системам переключения изменений объемной доли I-го домена вследствие притока $\dot{c}^{J\to I}$ при переключении доменов из J в I и вследствие оттока $\dot{c}^{I\to J}$ при переключении из I в J:

$$\dot{c}_I = \sum_{\substack{J=1 \\ J\ne I}}^{N}\left(\dot{c}^{J\to I} - \dot{c}^{I\to J}\right). \qquad (11)$$

Как следствие соотношений (5) и (11), скорости остаточных деформаций можно представить в следующем виде:

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^r = \sum_{I=1}^{N} \dot{c}_I \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^r = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \left(\dot{c}^{J\to I} - \dot{c}^{I\to J}\right) \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^r = \\ = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \dot{c}^{J\to I} \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^r - \sum_{J=1}^{N} \sum_{\substack{I=1 \\ I\neq J}}^{N} \dot{c}^{J\to I} \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_J^r = \\ = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \dot{c}^{J\to I} \left(\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^r - \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_J^r\right). \tag{12}$$

Отсюда следует представление для тензора скорости остаточной деформации и аналогично получаемое выражение для вектора скорости поляризации:

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^r = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \dot{c}^{J\to I} \Delta \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r, \tag{13}$$

$$\dot{\mathbf{P}}^r = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \dot{c}^{J\to I} \Delta \tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^r, \tag{14}$$

где тензоры и векторы

$$\Delta \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r = \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^r - \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_J^r = \tilde{\boldsymbol{\mu}}_{J\to I} \tilde{\varepsilon}_0^r,$$
$$\Delta \tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^r = \tilde{\mathbf{P}}_I^r - \tilde{\mathbf{P}}_J^r = \tilde{\boldsymbol{\beta}}_{J\to I} \tilde{P}_0^r$$

определяются константами, характеризующими кристаллическую решетку; $\tilde{\boldsymbol{\mu}}_{J\to I}$ и $\tilde{\boldsymbol{\beta}}_{J\to I}$ – нормированные тензор и вектор Шмидта; $\tilde{\varepsilon}_0^r$ и $\tilde{P}_0^r$ – спонтанная деформация и поляризация.

Аналогичным образом на основе уравнений (8) и (11) определяются скорости изменения упругих, пьезоэлектрических и диэлектрических модулей:

$$^4\dot{\mathbf{S}}^E = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \dot{c}^{J\to I} \Delta\, ^4\tilde{\mathbf{S}}_{J\to I}^E, \\ ^3\dot{\mathbf{d}} = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \dot{c}^{J\to I} \Delta\, ^3\tilde{\mathbf{d}}_{J\to I}, \\ \dot{\boldsymbol{\kappa}}^\sigma = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \dot{c}^{J\to I} \Delta \tilde{\boldsymbol{\kappa}}_{J\to I}^\sigma. \tag{15}$$

Уравнения для вычисления кинематических переменных $\dot{c}^{J\to I}$, играющих фундаментальную роль при описании процессов переключения, вводятся из условия априорного удовлетворения термодинамическим ограничениям.

Ограничиваясь при разложении в ряд свободной энергии (термодинамического потенциала Гельмгольца) членами не выше второго порядка малости, приходим к выражению для свободной энергии в виде квадратичной формы по обратимым составляющим тензора деформации $\boldsymbol{\varepsilon}^l$ и вектора электрической индукции $\mathbf{D}^l$:

$$\psi = (1/2)\boldsymbol{\varepsilon}^l \cdot\cdot\, ^4\mathbf{C}^D \cdot\cdot\, \boldsymbol{\varepsilon}^l - \\ - \mathbf{D}^l \cdot\, ^3\mathbf{h} \cdot\cdot\, \boldsymbol{\varepsilon}^l + (1/2)\mathbf{D}^l \cdot \boldsymbol{\beta}^\varepsilon \cdot \mathbf{D}^l. \tag{16}$$

Предполагается, что свободная энергия есть функция тензора обратимых деформаций $\boldsymbol{\varepsilon}^l$, вектора обратимого электрического смещения $\mathbf{D}^l$, а также ряда внутренних переменных состояния c_I (от них зависят модули $^4\mathbf{C}^D$, $^3\mathbf{h}$, $\boldsymbol{\beta}^\varepsilon$): $\psi(\boldsymbol{\varepsilon}^l, \mathbf{D}^l, c_I)$.

Подстановка выражения свободной энергии (16) в диссипативное неравенство

$$\delta = \boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot\, \dot{\boldsymbol{\varepsilon}} + \mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{D}} - \dot{\psi} \geq 0 \tag{17}$$

приводит к соотношению

$$\delta = \left(\boldsymbol{\sigma} - \frac{\partial \psi}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^l}\right) \cdot\cdot\, \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^l + \left(\mathbf{E} - \frac{\partial \psi}{\partial \mathbf{D}^l}\right) \cdot \dot{\mathbf{D}}^l + \\ + \boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot\, \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^r + \mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{P}}^r - \sum_{I=1}^{N} \frac{\partial \psi}{\partial c_I} \dot{c}_I \geq 0. \tag{18}$$

Следствием независимости изменения $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^l$ и $\dot{\mathbf{D}}^l$ при рассмотрении линейного неравенства (18), являются следующие соотношения:

$$\boldsymbol{\sigma} = \frac{\partial \psi}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^l}, \tag{19}$$

$$\mathbf{E} = \frac{\partial \psi}{\partial \mathbf{D}^{l}}, \tag{20}$$

$$\begin{gathered}\delta = \boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^{r} + \mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{P}}^{r} + \\ + (1/2)\, \boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot {}^{4}\dot{\mathbf{S}}^{E} \cdot\cdot \boldsymbol{\sigma} + \mathbf{E} \cdot {}^{3}\dot{\mathbf{d}} \cdot\cdot \boldsymbol{\sigma} + \\ + (1/2)\, \mathbf{E} \cdot \dot{\boldsymbol{\kappa}}^{\sigma} \cdot \mathbf{E} \geq 0.\end{gathered} \tag{21}$$

Равенства (19) и (20) приводят к определяющим уравнениям (4). Доказательство возможности замены суммы $-\sum_{I=1}^{N} \frac{\partial \psi}{\partial c_I} \dot{c}_I$ скоростями изменения упругих, пьезоэлектрических и диэлектрических модулей при переключении рассмотрено в работе [11].

Подстановка выражений (13) – (15) в соотношение (21) приводит к выражению

$$\delta = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J \neq I}}^{N} G^{J\to I} \dot{c}^{J\to I} \geq 0, \tag{22}$$

где движущая сила $G^{J\to I}$, сопряженная с $c^{J\to I}$, определяется следующим равенством:

$$\begin{gathered}G^{J\to I} = \boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot \Delta \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^{r}_{J\to I} + \mathbf{E} \cdot \Delta \tilde{\mathbf{P}}^{r}_{J\to I} + \\ + (1/2)\, \boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot \Delta^{4} \tilde{\mathbf{S}}^{E}_{J\to I} \cdot\cdot \boldsymbol{\sigma} + \\ + \mathbf{E} \cdot \Delta^{3} \tilde{\mathbf{d}}_{J\to I} \cdot\cdot \boldsymbol{\sigma} + (1/2)\, \mathbf{E} \cdot \Delta \tilde{\boldsymbol{\kappa}}^{\sigma}_{J\to I} \cdot \mathbf{E}.\end{gathered} \tag{23}$$

Одним из возможных способов удовлетворить условие неотрицательности диссипации (22) является выбор уравнения эволюции $c^{J\to I}$ в виде

$$\dot{c}^{J\to I} = \begin{cases} B^{J\to I} \left(\dfrac{G^{J\to I}}{G_c^{J\to I}} \right)^{n} \left(\dfrac{c_J}{C_0} \right)^{m}, \\ G^{J\to I} \geq 0; \\ 0, G^{J\to I} < 0, \end{cases} \tag{24}$$

где $G^{J\to I} > 0$, $B^{J\to I} > 0$, $n > 0$, $m > 0$, $C_0 > 0$ – константы материала, определяющие форму гистерезисных кривых.

Введение последнего сомножителя $(c_J / C_0)^m$ в уравнение (24) позволяет описать эффект насыщения и удовлетворить ограничениям (7), так как при исчерпании концентрации донора, т. е. при $c^J \to 0$, скорость переключения падает, т. е. $\dot{c}^{J\to I} \to 0$, чем обеспечивается выполнение условия $c^J \geq 0$. Параметр $B^{J\to I}$ характеризует вязкость материала (в общем случае для каждой системы переключения свою).

Уравнение эволюции (24) соответствует реономной модели без порога переключения, представляющей собой аналог нелинейной вязкоупругой модели. Однако при больших значениях n она позволяет описать склерономное поведение с порогом переключения.

Модель с учетом дефектов

В рамках данной работы, базирующейся на микромеханически мотивированном феноменологическом описании [11], предполагается, что для описания электромеханического состояния реального кристаллита дополнительно вводятся две внутренние переменные: вектор поляризации дефектов $\mathbf{P}^d$ и тензор деформации дефектов $\boldsymbol{\varepsilon}^d$. Они служат дополнительными аргументами свободной энергии и уравнений эволюции внутренних переменных. Поляризация кристаллита $\mathbf{P}^d$ и его деформация $\boldsymbol{\varepsilon}^d$, возникающие вследствие появления точечных дефектов, вычисляются на основе осреднения в пределах представительного объема кристалла V_{RVC}:

$$\begin{gathered}\mathbf{P}^{d} = \frac{1}{V_{\mathrm{RVC}}} \int\limits_{V_{\mathrm{RVC}}} \tilde{\mathbf{P}}^{d}\, dV, \\ \boldsymbol{\varepsilon}^{d} = \frac{1}{V_{\mathrm{RVC}}} \int\limits_{V_{\mathrm{RVC}}} \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^{d}\, dV.\end{gathered} \tag{25}$$

Изменение дипольного момента $\tilde{\mathbf{p}}^d$ при образовании дефекта определяется выражением (см. работу [1]):

$$\tilde{\mathbf{p}}^{d} = \tilde{\mathbf{p}}^{s} + \sum_{i} \tilde{q}_i \Delta \tilde{\mathbf{r}}_i,$$

где $\tilde{\mathbf{p}}^s$ – собственный дипольный момент дефекта в положении, отличном от центра инверсии; $\Delta \tilde{\mathbf{r}}_i$ – смещение зарядов $\tilde{q}_i$ в окружающей решетке вследствие появления дефекта.

Распределения полей электрического потенциала и вектора поляризации неподвижного диполя, необходимые для вычисления вектора $\mathbf{P}^d$ по формуле (25), определяются равенствами:

$$\tilde{\varphi}^d = -\tilde{\mathbf{p}}^d \cdot \nabla r^{-1} / 4\pi\varepsilon_0 = \tilde{\mathbf{p}}^d \cdot \mathbf{r} r^{-3} / 4\pi\varepsilon_0, \quad (26)$$

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{P}}^d &= \tilde{\mathbf{p}}^d \cdot \nabla\nabla r^{-1} (\varepsilon - \varepsilon_0) / 4\pi\varepsilon_0 = \\ &= -\tilde{\mathbf{p}}^d \cdot (\mathbf{1} - 3\mathbf{rr} r^{-2}) r^{-3} (\varepsilon - \varepsilon_0) / 4\pi\varepsilon_0,\end{aligned} \quad (27)$$

где $\mathbf{r}$ – радиус-вектор, берущий начало из точки расположения дефекта; r – его длина; $\mathbf{1}$ – единичный тензор; ε, ε_0 – диэлектрические проницаемости материала и вакуума.

Если в кристалле имеется система полярных дефектов, ориентированных одинаковым образом, то они создают объемную поляризацию $\mathbf{P}^d = n\tilde{\mathbf{P}}^d$, где n – количество дефектов в единице объема.

В соответствии с континуальной теорией точечных дефектов [30], перемещения в неограниченном теле, вызванные образованием точечных дефектов (дефект образуется через вставку/удаление несоразмерного шара в сферическую полость) и соответствующие им деформации имеют вид:

$$\tilde{\mathbf{u}}^d = -c\nabla r^{-1} = c\mathbf{r} r^{-3}, \quad (28)$$

$$\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^d = -c\nabla\nabla r^{-1} = c(\mathbf{1} - 3\mathbf{rr} r^{-2}) r^{-3}, \quad (29)$$

где $c = \Delta V / 4\pi$ – мощность дефекта, ΔV – изменение объема при вставке/удалении.

При формулировке определяющих уравнений предполагается, что величины $\mathbf{P}^d$ и $\boldsymbol{\varepsilon}^d$, описывающие влияние дефектов (так же как $\mathbf{P}^r$ и $\boldsymbol{\varepsilon}^r$) и учитывающие процессы переключения, представляют собой вклад в общие спонтанные поляризацию и деформацию, и поэтому вместо сумм (1) и (2) в общем случае используются разложения

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}^l + \boldsymbol{\varepsilon}^r + \boldsymbol{\varepsilon}^d, \quad (30)$$

$$\mathbf{D} = \mathbf{D}^l + \mathbf{P}^r + \mathbf{P}^d. \quad (31)$$

Предполагается, что свободная энергия реального (содержащего дефект) кристаллита допускает разложение:

$$\psi = \psi_{ideal} + \psi_{defect}, \quad (32)$$

где $\psi_{defect} = \psi_{defect}(\mathbf{P}^d, \boldsymbol{\varepsilon}^d, \mathbf{P}^r, \boldsymbol{\varepsilon}^r)$ – свободная энергия, вызванная появлением дефектов; $\psi_{ideal} = \psi_{ideal}(\mathbf{D}^l, \boldsymbol{\varepsilon}^l, c_I)$ – обратимая часть свободной энергии (16).

Величина ψ_{ideal} определяется квадратичной формой обратимых составляющих индукции $\mathbf{D}^l$ и деформации $\boldsymbol{\varepsilon}^l$:

$$\begin{aligned}\psi_{ideal} &= (1/2)\boldsymbol{\varepsilon}^l \cdot\cdot {}^4\mathbf{C}^E \cdot\cdot \boldsymbol{\varepsilon}^l + \\ &+ \mathbf{D}^l \cdot {}^3\mathbf{h} \cdot\cdot \boldsymbol{\varepsilon}^l + (1/2)\mathbf{D}^l \cdot \boldsymbol{\beta}^\varepsilon \cdot \mathbf{D}^l.\end{aligned} \quad (33)$$

Аргументы $\mathbf{P}^r$, $\boldsymbol{\varepsilon}^r$ в функции

$$\psi_{defect} = \psi_{defect}(\mathbf{P}^d, \boldsymbol{\varepsilon}^d, \mathbf{P}^r, \boldsymbol{\varepsilon}^r)$$

введены для учета взаимного влияния дефектов и доменных стенок.

Поскольку данное исследование нацелено на разработку линейной теории дефектов в сегнетоэлектроупругих материалах, мы можем при разложении свободной энергии в ряд ограничиться слагаемыми не выше второго порядка малости. Наиболее общее выражение свободной энергии дефектов в виде квадратичной формы имеет вид

$$\begin{aligned}\psi_{defect} &= (1/2)\mathbf{P}^d \cdot \mathbf{Q}_P \cdot \mathbf{P}^d + \mathbf{P}^d \cdot {}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon} \cdot\cdot \boldsymbol{\varepsilon}^d + \\ &+ (1/2)\boldsymbol{\varepsilon}^d \cdot\cdot {}^4\mathbf{Q}_\varepsilon \cdot\cdot \boldsymbol{\varepsilon}^d + \\ &+ \mathbf{P}^d \cdot \mathbf{L}_P \cdot \mathbf{P}^r + \mathbf{P}^d \cdot {}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon} \cdot\cdot \boldsymbol{\varepsilon}^r + \\ &+ \mathbf{P}^r \cdot {}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P} \cdot\cdot \boldsymbol{\varepsilon}^d + \boldsymbol{\varepsilon}^d \cdot\cdot {}^4\mathbf{L}_\varepsilon \cdot\cdot \boldsymbol{\varepsilon}^r,\end{aligned} \quad (34)$$

где $\mathbf{Q}_P$, ${}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon}$, ${}^4\mathbf{Q}_\varepsilon$, $\mathbf{L}_P$, ${}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}$, ${}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}$, ${}^4\mathbf{L}_\varepsilon$ – тензоры 2-го, 3-го и 4-го рангов, характеризующие чувствительность материала к влиянию дефектов. $\mathbf{Q}$-тензоры используются в квадратичных членах по отношению к величинам, характеризующим дефектное состояние $\mathbf{P}^d$ и $\boldsymbol{\varepsilon}^d$, L-тензоры – в линейных.

В силу симметрии тензоров $\boldsymbol{\varepsilon}^r$ и $\boldsymbol{\varepsilon}^d$,

$$\varepsilon_{ij}^r = \varepsilon_{ji}^r,\ \varepsilon_{ij}^d = \varepsilon_{ji}^d\ \left(i, j = \overline{1,3}\right),$$

тензоры ${}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon}$, ${}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}$, ${}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}$, ${}^4\mathbf{L}_{\varepsilon}$, ${}^4\mathbf{Q}_{\varepsilon}$ обладают симметрией

$$Q_{kij}^{P\varepsilon} = Q_{kji}^{P\varepsilon},\ L_{kij}^{P\varepsilon} = L_{kji}^{P\varepsilon},\ L_{kij}^{\varepsilon P} = L_{kji}^{\varepsilon P},$$

$$Q_{ijkl}^{\varepsilon} = Q_{jikl}^{\varepsilon} = Q_{ijlk}^{\varepsilon},\ L_{ijkl}^{\varepsilon} = L_{jikl}^{\varepsilon} = L_{ijlk}^{\varepsilon}.$$

Кроме этого, тензоры $\mathbf{Q}_P$ и ${}^4\mathbf{Q}_{\varepsilon}$ обладают симметрией

$$Q_{ik}^{P} = Q_{ki}^{P},\ Q_{ijkl}^{\varepsilon} = Q_{klij}^{\varepsilon}$$

вследствие идентичности левого и правого сомножителей в выражении (34).

В общем случае тензоры $\mathbf{L}_P$ и ${}^4\mathbf{L}_{\varepsilon}$ подобной симметрией не обладают. Только в случае точечных дефектов, стремящихся при переключении поляризации восстановить симметрию [28, 31, 32], так чтобы $\mathbf{P}^d$ стал сонаправлен с $\mathbf{P}^r$, а $\boldsymbol{\varepsilon}^d$ соосен с $\boldsymbol{\varepsilon}^r$, тензоры $\mathbf{L}_P$ и ${}^4\mathbf{L}_{\varepsilon}$ обладают симметрией

$$L_{ik}^{P} = L_{ki}^{P},\ L_{ijkl}^{\varepsilon} = L_{klij}^{\varepsilon}.$$

Вышеприведенные условия симметрии позволяют сократить число независимых компонент рассматриваемых тензоров.

В рамках модели трансверсально-изотропного материала тензоры

$$\mathbf{Q}_P, \mathbf{L}_P, {}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon}, {}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}, {}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}, {}^4\mathbf{Q}_{\varepsilon}, {}^4\mathbf{L}_{\varepsilon},$$

фигурирующие в формуле (34), выражаются как

$$\begin{gathered}
\mathbf{Q}_P = Q_{11}^P\left(\mathbf{1} - \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right) + Q_{33}^P\mathbf{p}\otimes\mathbf{p},\\
\mathbf{L}_P = L_{11}^P\left(\mathbf{1} - \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right) + L_{33}^P\mathbf{p}\otimes\mathbf{p},\\
{}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon} = Q_{31}^{P\varepsilon}\left(\mathbf{p}\otimes\mathbf{1} - \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right) +\\
+ Q_{33}^{P\varepsilon}\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} +\\
+ \left(1/2\right)Q_{15}^{P\varepsilon}\left(\mathbf{1}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{p} - 2\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right),\\
{}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon} = L_{31}^{P\varepsilon}\left(\mathbf{p}\otimes\mathbf{1} - \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right) +\\
+ L_{33}^{P\varepsilon}\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} +\\
+ \left(1/2\right)L_{15}^{P\varepsilon}\left(\mathbf{1}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{p} - 2\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right),\\
{}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P} = L_{31}^{\varepsilon P}\left(\mathbf{p}\otimes\mathbf{1} - \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right) +\\
+ L_{33}^{\varepsilon P}\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} +\\
+ \left(1/2\right)L_{15}^{\varepsilon P}\left(\mathbf{1}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{p} - 2\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\right),\\
{}^4\mathbf{Q}_{\varepsilon} = Q_1^{\varepsilon}\mathbf{1}\otimes\mathbf{1} + Q_2^{\varepsilon}\left(\mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{1} + \mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right) +\\
+ Q_3^{\varepsilon}\left(\mathbf{1}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{1}\right) +\\
+ Q_4^{\varepsilon}\left(\mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right) +\\
+ Q_5^{\varepsilon}\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p},\\
{}^4\mathbf{L}_{\varepsilon} = L_1^{\varepsilon}\mathbf{1}\otimes\mathbf{1} + L_2^{\varepsilon}\left(\mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{1} + \mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right) +\\
+ L_3^{\varepsilon}\left(\mathbf{1}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{1}\right) +\\
+ L_4^{\varepsilon}\left(\mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{p}\otimes\mathbf{p} + \mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right) +\\
+ L_5^{\varepsilon}\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p}\otimes\mathbf{p},
\end{gathered} \tag{35}$$

где $\mathbf{p}$ – вектор единичной нормали к плоскости изотропии, определяемой направлением поляризации $\mathbf{P}^r$.

Для задания тензоров $\mathbf{Q}_P$, $\mathbf{L}_P$, ${}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon}$, ${}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}$, ${}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}$, ${}^4\mathbf{Q}_{\varepsilon}$, ${}^4\mathbf{L}_{\varepsilon}$, в соответствии с выражениями (35), требуется знание 23 констант материала:

$$\begin{gathered}
Q_{11}^P, Q_{33}^P, L_{11}^P, L_{33}^P, Q_{31}^{P\varepsilon}, Q_{33}^{P\varepsilon}, Q_{15}^{P\varepsilon},\\
L_{31}^{P\varepsilon}, L_{33}^{P\varepsilon}, L_{15}^{P\varepsilon}, L_{31}^{\varepsilon P}, L_{33}^{\varepsilon P}, L_{15}^{\varepsilon P},\\
Q_1^{\varepsilon}, Q_2^{\varepsilon}, Q_3^{\varepsilon}, Q_4^{\varepsilon}, Q_5^{\varepsilon},\\
L_1^{\varepsilon}, L_2^{\varepsilon}, L_3^{\varepsilon}, L_4^{\varepsilon}, L_5^{\varepsilon}.
\end{gathered}$$

В изотропном случае тензоры $\mathbf{Q}_P$, $\mathbf{L}_P$, ${}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon}$, ${}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}$, ${}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}$, ${}^4\mathbf{Q}_{\varepsilon}$, ${}^4\mathbf{L}_{\varepsilon}$ допускают следующее представление:

$$\begin{gathered}
\mathbf{Q}_P = Q^P\mathbf{1},\\
\mathbf{L}_P = L^P\mathbf{1},\\
\mathbf{Q}_{P\varepsilon} = {}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon} = {}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P} = {}^3\mathbf{0},\\
{}^4\mathbf{Q}_{\varepsilon} = Q_1^{\varepsilon}\mathbf{1}\otimes\mathbf{1} + Q_2^{\varepsilon}\left(\mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{1} + \mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right),\\
{}^4\mathbf{L}_{\varepsilon} = L_1^{\varepsilon}\mathbf{1}\otimes\mathbf{1} + L_2^{\varepsilon}\left(\mathbf{1}\overline{\otimes}\mathbf{1} + \mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right).
\end{gathered} \tag{36}$$

Подстановка формул (30) – (32) в определение диссипации (17) приводит к выражению для диссипативной функции, учитывающей движение доменных стенок, их взаимодействие с дефектами и процессы дефектообразования:

$$\begin{gathered}\delta=\left(\boldsymbol{\sigma}-\frac{\partial\psi_{ideal}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^l}\right)\cdot\cdot\,\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^l+\left(\boldsymbol{\sigma}-\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^r}\right)\cdot\cdot\,\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^r+\\+\left(\boldsymbol{\sigma}-\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^d}\right)\cdot\cdot\,\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^d+\left(\mathbf{E}-\frac{\partial\psi_{ideal}}{\partial\mathbf{D}^l}\right)\cdot\dot{\mathbf{D}}^l+\\+\left(\mathbf{E}-\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^r}\right)\cdot\dot{\mathbf{P}}^{\mathrm{r}}+\left(\mathbf{E}-\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^d}\right)\cdot\dot{\mathbf{P}}^d-\\-\left(1/2\right)\boldsymbol{\sigma}\cdot\cdot\,{}^4\dot{\mathbf{S}}^E\cdot\cdot\,\boldsymbol{\sigma}-\mathbf{E}\cdot{}^3\dot{\mathbf{d}}\cdot\cdot\,\boldsymbol{\sigma}-\\-\left(1/2\right)\mathbf{E}\cdot\dot{\boldsymbol{\kappa}}^{\sigma}\cdot\mathbf{E}\geq 0.\end{gathered}\tag{37}$$

Диссипация при изменении линейных обратимых деформаций и электрической индукции отсутствует, поэтому разности

$$\boldsymbol{\sigma}-\frac{\partial\psi_{ideal}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^l},\ \mathbf{E}-\frac{\partial\psi_{ideal}}{\partial\mathbf{D}^l}$$

должны обратиться в нуль. Отсюда следует, что тензор напряжений и вектор напряженности электрического поля, удовлетворяющие условию неотрицательности диссипации, определяются соотношениями:

$$\begin{cases}\boldsymbol{\sigma}=\dfrac{\partial\psi_{ideal}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^l}={}^4\mathbf{C}^D\cdot\cdot\left(\boldsymbol{\varepsilon}-\boldsymbol{\varepsilon}^r-\boldsymbol{\varepsilon}^d\right)-\\-{}^3\mathbf{h}^T\cdot\left(\mathbf{D}-\mathbf{P}^r-\mathbf{P}^d\right),\\\mathbf{E}=\dfrac{\partial\psi_{ideal}}{\partial\mathbf{D}^l}=-{}^3\mathbf{h}\cdot\cdot\left(\boldsymbol{\varepsilon}-\boldsymbol{\varepsilon}^r-\boldsymbol{\varepsilon}^d\right)+\\+\boldsymbol{\beta}^{\varepsilon}\cdot\left(\mathbf{D}-\mathbf{P}^r-\mathbf{P}^d\right).\end{cases}\tag{38}$$

Следует отметить, что в подавляющем большинстве случаев, актуальных для практики, последними слагаемыми в круглых скобках системы уравнений (38) можно пренебречь, в силу предполагаемой малой концентрации дефектов.

Учет соотношений (38) в выражении (37) приводит к следующему выражению для диссипативной функции:

$$\begin{gathered}\delta=\left(\boldsymbol{\sigma}-\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^r}\right)\cdot\cdot\,\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^r+\left(\boldsymbol{\sigma}-\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^d}\right)\cdot\cdot\,\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^d+\\+\left(\mathbf{E}-\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^r}\right)\cdot\dot{\mathbf{P}}^{\mathrm{r}}+\left(\mathbf{E}-\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^d}\right)\cdot\dot{\mathbf{P}}^d-\\-\left(1/2\right)\boldsymbol{\sigma}\cdot\cdot\,{}^4\dot{\mathbf{S}}^E\cdot\cdot\,\boldsymbol{\sigma}-\mathbf{E}\cdot{}^3\dot{\mathbf{d}}\cdot\cdot\,\boldsymbol{\sigma}-\\-\left(1/2\right)\mathbf{E}\cdot\dot{\boldsymbol{\kappa}}^{\sigma}\cdot\mathbf{E}\geq 0.\end{gathered}\tag{39}$$

Ниже представлены конкретные выражения уравнений эволюции для случаев неизменяющихся (замороженных) и изменяющихся (переориентируемых) дефектов, полученные на основе априорного удовлетворения условию неотрицательности диссипации (39) для произвольных программ нагружения.

Неизменяющиеся дефекты. В случае неизменяющихся (замороженных, трудно переключаемых) дефектов, когда $\mathbf{P}^d$ = const и $\boldsymbol{\varepsilon}^d$ = const, уравнение (39) упрощается:

$$\begin{gathered}\delta=\left(\boldsymbol{\sigma}-\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^r}\right)\cdot\cdot\,\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^r+\left(\mathbf{E}-\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^r}\right)\cdot\dot{\mathbf{P}}^r-\\-\left(1/2\right)\boldsymbol{\sigma}\cdot\cdot\,{}^4\dot{\mathbf{S}}^E\cdot\cdot\,\boldsymbol{\sigma}-\mathbf{E}\cdot{}^3\dot{\mathbf{d}}\cdot\cdot\,\boldsymbol{\sigma}-\\-\left(1/2\right)\mathbf{E}\cdot\dot{\boldsymbol{\kappa}}^{\sigma}\cdot\mathbf{E}\geq 0.\end{gathered}\tag{40}$$

Подстановка выражений $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^r, \dot{\mathbf{P}}^r, {}^4\dot{\mathbf{S}}^E, {}^3\dot{\mathbf{d}}, \dot{\boldsymbol{\kappa}}^{\sigma}$ через $\dot{c}^{J\to I}$ (13) – (15) в уравнение (40) приводит к представлению

$$\delta=\sum_{I=1}^{N}\sum_{\substack{J=1\\J\neq I}}^{N}\left(G_{ideal}^{J\to I}-G_{defect}^{J\to I}\right)\dot{c}^{J\to I}\geq 0,\tag{41}$$

где $G_{ideal}^{J\to I}$ вычисляется на основе равенства (23), а $G_{defect}^{J\to I}$ определяется соотношением:

$$\begin{gathered}G_{defect}^{J\to I}=\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^r}\cdot\cdot\,\Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^r_{J\to I}+\\+\frac{\partial\psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^r}\cdot\Delta\tilde{\mathbf{P}}^r_{J\to I}.\end{gathered}\tag{42}$$

В случае представления свободной энергии дефектов ψ_{defect} в виде квадратичной формы (34), с учетом анизотропии и взаимного влияния электрических и механических процессов дефектообразования, выражение для $G_{defect}^{J\to I}$ (42) принимает вид:

$$G_{defect}^{J\to I} = \mathbf{P}^d \cdot \mathbf{L}_P \cdot \Delta\tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^r + \mathbf{P}^d \cdot {}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon} \cdot\cdot\, \Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r + \\ + \Delta\tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^r \cdot {}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P} \cdot\cdot\, \boldsymbol{\varepsilon}^d + \boldsymbol{\varepsilon}^d \cdot\cdot\, {}^4\mathbf{L}_\varepsilon \cdot\cdot\, \Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r. \quad (43)$$

В простейшем случае представления свободной энергии ψ_{defect} в изотропном приближении (36), выражение (43) упрощается до трех слагаемых, содержащих только три скалярных параметра материала:

$$G_{defect}^{J\to I} = L^P \mathbf{P}^d \cdot \Delta\tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^r + \\ + L_1^\varepsilon \mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^d \mathrm{tr}\Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r + 2L_2^\varepsilon \boldsymbol{\varepsilon}^d \cdot\cdot\, \Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r. \quad (44)$$

Уравнение эволюции для $\dot{c}^{J\to I}$, безусловно удовлетворяющее условию неотрицательности диссипации (41), принимаем в следующем виде:

$$\dot{c}^{J\to I} = \begin{cases} B^{J\to I}\left(\dfrac{G^{J\to I} - G_{defect}^{J\to I}}{G_c^{J\to I}}\right)^n \left(\dfrac{c_J}{C_0}\right)^m, \\ G^{J\to I} \ge G_{defect}^{J\to I}; \\ 0,\ G^{J\to I} < G_{defect}^{J\to I}. \end{cases} \quad (45)$$

Структура уравнения (45) соответствует модели кинематического упрочнения, используемой в теории пластичности. Величина $G_{defect}^{J\to I}$ определяет вклад системы переключения доменов из J в I в смещение петли гистерезиса. Наличие точечных дефектов приводит к возникновению внутренних полей смещения напряжений $\boldsymbol{\sigma}_d$ и электрических полей $\mathbf{E}_d$, непосредственно определяющих сдвиг центров петель гистерезисов. Как следует из выражений (43) и (23), в общем случае представления свободной энергии дефектов в виде квадратичной формы (34) внутренние поля смещения линейно связаны с деформацией и поляризацией дефектов:

$$\boldsymbol{\sigma}_d = {}^4\mathbf{L}_\varepsilon^T \cdot\cdot\, \boldsymbol{\varepsilon}^d + {}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}^T \cdot \mathbf{P}^d, \\ \mathbf{E}_d = {}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P} \cdot\cdot\, \boldsymbol{\varepsilon}^d + \mathbf{L}_P^T \cdot \mathbf{P}^d. \quad (46)$$

Математическая структура полученных выражений (46) для внутренних полей смещения аналогична структуре определяющих уравнений для пьезоэлектриков (сравните эти выражения с уравнением (4) или (38)). В рассматриваемом случае неизменяющихся дефектов внутренние поля смещения остаются постоянными.

Упрощенная формулировка в изотропном приближении (36), получаемая в результате применения выражений (46), приводит к отсутствию влияния перекрестных слагаемых:

$$\mathrm{tr}\,\boldsymbol{\sigma}_d = L_{tr}^\varepsilon \mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^d, \\ \mathrm{dev}\boldsymbol{\sigma}_d = L_{dev}^\varepsilon \mathrm{dev}\boldsymbol{\varepsilon}^d, \\ \mathbf{E}_d = L^P \mathbf{P}^d, \quad (47)$$

где $L_{tr}^\varepsilon = 3L_1^\varepsilon + 2L_2^\varepsilon$, $L_{dev}^\varepsilon = 2L_2^\varepsilon$.

Использование микроструктурной модели сегнетоэлектроупругого материала (42) – (45) с неизменяющимися дефектами $\mathbf{P}^d$ = = const и $\boldsymbol{\varepsilon}^d$ = const позволяют описать горизонтальное смещение петель гистерезиса.

Изменяющиеся дефекты. Дефекты, возникающие в результате внешнего электрического/механического воздействия или внутренних локальных неоднородных полей, могут эволюционировать, что приводит к изменению их характеристик (концентрация, направление поляризации, дипольный момент, инвариант). Кинетические модели изменения внутреннего поля смещения на основе переключения ориентации дипольных дефектов рассматривались в статьях [15, 17, 33], а также на основе диффузионного механизма миграции заряженных частиц в статьях [16, 34]. Ниже рассматривается введение уравнений эволюции в рамках феноменологического и микроструктурного подходов на основе использования законов термодинамики.

Одним из простейших способов удовлетворить условие неотрицательности диссипации (39) в рамках феноменологической модели служит введение уравнений эволюции, в которых скорости изменения переменных, характеризующих дефектное состояние, $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^d$ и $\dot{\mathbf{P}}^d$ пропорциональны соответствующим движущим силам:

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^d = {}^4\mathbf{B}_\varepsilon \cdot\cdot \left(\boldsymbol{\sigma} - \frac{\partial \psi_{defect}}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^d}\right),$$
$$\dot{\mathbf{P}}^d = \mathbf{B}_P \cdot \left(\mathbf{E} - \frac{\partial \psi_{defect}}{\partial \mathbf{P}^d}\right), \quad (48)$$

где ${}^4\mathbf{B}_\varepsilon$ и $\mathbf{B}_P$ – постоянные тензоры, характеризующие релаксационные свойства (вязкость) дефектов.

Для обеспечения неотрицательности диссипации необходимо потребовать выполнения условий положительной определенности тензоров ${}^4\mathbf{B}_\varepsilon$ и $\mathbf{B}_P$:

$$\mathbf{x} \cdot\cdot {}^4\mathbf{B}_\varepsilon \cdot\cdot \mathbf{x} \geq 0; \;\; \mathbf{y} \cdot \mathbf{B}_P \cdot \mathbf{y} \geq 0$$

для любых тензоров 2-го ранга $\mathbf{x}$ и векторов $\mathbf{y}$.

Тогда диссипация, вызванная изменением дефектного состояния, будет представлять собой положительно определенную квадратичную форму:

$$\delta_d = \left(\boldsymbol{\sigma} - \frac{\partial \psi_{defect}}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^d}\right) \cdot\cdot {}^4\mathbf{B}_\varepsilon \cdot\cdot \left(\boldsymbol{\sigma} - \frac{\partial \psi_{defect}}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^d}\right) +$$
$$+ \left(\mathbf{E} - \frac{\partial \psi_{defect}}{\partial \mathbf{P}^d}\right) \cdot \mathbf{B}_P \cdot \left(\mathbf{E} - \frac{\partial \psi_{defect}}{\partial \mathbf{P}^d}\right). \quad (49)$$

В общем случае представления свободной энергии дефектов ψ_{defect} в виде квадратичной формы (34), уравнения эволюции (48) приобретают вид линейных неоднородных обыкновенных дифференциальных уравнений:

$$\dot{\mathbf{P}}^d = \mathbf{B}_P \cdot \Big(\mathbf{E} - \boldsymbol{\varepsilon}^d \cdot\cdot {}^3\mathbf{Q}^T_{P\varepsilon} - \mathbf{P}^d \cdot \mathbf{Q}_P -$$
$$- \boldsymbol{\varepsilon}^r \cdot\cdot {}^4\mathbf{L}^T_{P\varepsilon} - \mathbf{P}^r \cdot \mathbf{L}^T_P\Big), \quad (50)$$

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^d = {}^4\mathbf{B}_\varepsilon \cdot\cdot \Big(\boldsymbol{\sigma} - \boldsymbol{\varepsilon}^d \cdot\cdot {}^4\mathbf{Q}_\varepsilon - \mathbf{P}^d \cdot {}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon} -$$
$$- \boldsymbol{\varepsilon}^r \cdot\cdot {}^4\mathbf{L}^T_\varepsilon - \mathbf{P}^r \cdot {}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}\Big). \quad (50)$$

Для упрощения анализа полученных уравнений ограничимся случаем изотропного приближения:

$$\mathbf{B}_P = B^P \mathbf{1},$$
$${}^4\mathbf{B}_\varepsilon = B^\varepsilon_1 \mathbf{1} \otimes \mathbf{1} + B^\varepsilon_2 \left(\mathbf{1} \overline{\otimes} \mathbf{1} + \mathbf{1} \underline{\otimes} \mathbf{1}\right), \quad (51)$$

где $B^P > 0$, $B^\varepsilon_1 > 0$, $B^\varepsilon_2 > 0$.

Представление выражения (51) в комбинации (36) приводит, вследствие уравнений (50), к несвязанной системе уравнений эволюции с постоянными скалярными коэффициентами:

$$\dot{\mathbf{P}}^d = B^P \left(\mathbf{E} - Q^P \mathbf{P}^d - L^P \mathbf{P}^r\right),$$
$$\mathrm{tr}\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^d = B^\varepsilon_{\mathrm{tr}} \left(\mathrm{tr}\boldsymbol{\sigma} - Q^\varepsilon_{\mathrm{tr}} \mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^d - L^\varepsilon_{\mathrm{tr}} \mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^r\right), \quad (52)$$
$$\mathrm{dev}\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^d = B^\varepsilon_{\mathrm{dev}} \left(\mathrm{dev}\boldsymbol{\sigma} - Q^\varepsilon_{\mathrm{dev}} \mathrm{dev}\boldsymbol{\varepsilon}^d - L^\varepsilon_{\mathrm{dev}} \mathrm{dev}\boldsymbol{\varepsilon}^r\right),$$

где

$$B^\varepsilon_{\mathrm{tr}} = 3B^\varepsilon_1 + 2B^\varepsilon_2, \;\; Q^\varepsilon_{\mathrm{tr}} = 3Q^\varepsilon_1 + 2Q^\varepsilon_2,$$
$$L^\varepsilon_{\mathrm{tr}} = 3L^\varepsilon_1 + 2L^\varepsilon_2, \;\; B^\varepsilon_{\mathrm{dev}} = 2B^\varepsilon_2,$$
$$Q^\varepsilon_{\mathrm{dev}} = 2Q^\varepsilon_2, \;\; L^\varepsilon_{\mathrm{dev}} = 2L^\varepsilon_2$$

– константы материала.

При произвольных заданных $\mathbf{E}(t)$, $\mathbf{P}^r(t)$, $\boldsymbol{\sigma}(t)$, $\boldsymbol{\varepsilon}^r(t)$, общее решение уравнений (52) при начальных условиях $\boldsymbol{\varepsilon}^d(0) = \boldsymbol{\varepsilon}^d_0$ и $\mathbf{P}^d(0) = \mathbf{P}^d_0$ имеет вид

$$\mathbf{P}^d = e^{-\frac{t}{\tau_P}} \mathbf{P}^d_0 + B^P \int_0^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_P}} \Big(\mathbf{E}(t') -$$
$$- L^P \mathbf{P}^r(t')\Big) dt',$$
$$\mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^d = e^{-\frac{t}{\tau^{\mathrm{tr}}_\varepsilon}} \mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^d_0 + \quad (53)$$
$$+ B^\varepsilon_{\mathrm{tr}} \int_0^t e^{-\frac{t-t'}{\tau^{\mathrm{tr}}_\varepsilon}} \Big(\mathrm{tr}\boldsymbol{\sigma}(t') - L^\varepsilon_{\mathrm{tr}} \mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^r(t')\Big) dt',$$

$$\mathrm{dev}\boldsymbol{\varepsilon}^d = e^{-\frac{t}{\tau_\varepsilon^{\mathrm{dev}}}}\mathrm{dev}\boldsymbol{\varepsilon}_0^d +$$
$$+B_{\mathrm{dev}}^\varepsilon \int_0^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_\varepsilon^{\mathrm{dev}}}}\left(\mathrm{dev}\boldsymbol{\sigma}(t') - L_{\mathrm{dev}}^\varepsilon \mathrm{dev}\boldsymbol{\varepsilon}^r(t')\right)dt',$$

где постоянные τ_P, τ_ε^{tr} и τ_ε^{dev}, определяющие время релаксации, задаются выражениями:

$$\tau_P = \frac{1}{B^P Q^P},\ \tau_\varepsilon^{\mathrm{tr}} = \frac{1}{B_{\mathrm{tr}}^\varepsilon Q_{\mathrm{tr}}^\varepsilon},$$
$$\tau_\varepsilon^{\mathrm{dev}} = \frac{1}{B_{\mathrm{dev}}^\varepsilon Q_{\mathrm{dev}}^\varepsilon}. \qquad (54)$$

При постоянных значениях $\boldsymbol{\sigma}$, $\boldsymbol{\varepsilon}^r$, $\mathbf{E}$, $\mathbf{P}^r$ (при старении), решение (53) упрощается:

$$\mathbf{P}^d = e^{-\frac{t}{\tau_P}}\mathbf{P}_0^d + B^P\left(\mathbf{E} - L^P\mathbf{P}^r\right)\left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_P}}\right),$$

$$\mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^d = e^{-\frac{t}{\tau_\varepsilon^{\mathrm{tr}}}}\mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}_0^d +$$
$$+B_{\mathrm{tr}}^\varepsilon\left(\mathrm{tr}\boldsymbol{\sigma} - L_{\mathrm{tr}}^\varepsilon \mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^r\right)\left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_\varepsilon^{\mathrm{tr}}}}\right), \qquad (55)$$

$$\mathrm{dev}\boldsymbol{\varepsilon}^d = e^{-\frac{t}{\tau_\varepsilon^{\mathrm{dev}}}}\mathrm{dev}\boldsymbol{\varepsilon}_0^d +$$
$$+B_{\mathrm{dev}}^\varepsilon\left(\mathrm{dev}\boldsymbol{\sigma} - L_{\mathrm{dev}}^\varepsilon \mathrm{dev}\boldsymbol{\varepsilon}^r\right)\left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_\varepsilon^{\mathrm{dev}}}}\right).$$

Таким образом, внутренние поля смещения $\boldsymbol{\sigma}_d$ и $\mathbf{E}_d$ (47), пропорциональные вычисленным $\boldsymbol{\varepsilon}^d$ и $\mathbf{P}^d$, в соответствии с решением (55), при старении в условиях наличия первичной поляризации будут увеличиваться во времени по закону $1 - \exp(-t/\tau)$, что подтверждается многочисленными экспериментальными данными [15 –17, 35] и теоретическими исследованиями на основе альтернативных подходов [15 – 17, 33, 34, 36].

При гармонически изменяющихся полях $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0\sin\omega t$ и напряжениях $\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}_0\sin\omega t$, решение (53) содержит слагаемое вида $\exp(-t/\tau)$, что указывает на возможность описать эффект уменьшения внутреннего поля смещения при высокочастотном гармоническом воздействии, наблюдаемом в экспериментах [17, 36, 37].

Следует отметить, что в рамках предложенной модели вычисление остаточной деформации $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^r$ и поляризации $\dot{\mathbf{P}}^r$ осуществляется так же, как и в случае неизменяющихся дефектов на основе уравнений (13) – (14) и (42) – (45).

Использование уравнений эволюции феноменологической модели для $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^d$ и $\dot{\mathbf{P}}^d$ в форме (48) позволяют описать горизонтальное смещение петли гистерезиса в зависимости от времени старения.

В микроструктурной модели эволюции дефектов учитывается дискретный характер возможных ориентаций дипольного дефекта в соответствии с реальным расположением кислородных вакансий в элементарной кристаллической ячейке. В этом случае, по аналогии с разложениями (5) и (6), деформация и поляризация дефектов определяются как сумма вкладов отдельных направлений:

$$\boldsymbol{\varepsilon}^d = \sum_{I=1}^{L} n_I\,\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^d, \qquad (56)$$

$$\mathbf{P}^d = \sum_{I=1}^{L} n_I\,\tilde{\mathbf{P}}_I^d, \qquad (57)$$

где L – число возможных направлений ориентаций дефекта (для перовскитов тетрагональной симметрии в поляризованном состоянии $L = N = 6$), n_I – плотность дипольных дефектов определенного направления (для перовскитов тетрагональной симметрии в поляризованном состоянии совпадает с ориентацией поляризации I-го домена).

В случае принятия предположения о неизменности суммарной плотности дефектов n_0, плотность n_I удовлетворяет ограничениям:

$$0 \le n_I \le n_0,\ \sum_{I=1}^{L} n_I = n_0. \qquad (58)$$

В работах [15, 17, 38] предложена термоактивационная модель переориентации дефектов, в соответствии с которой кинетика дефектов описывается системой линейных дифференциальных уравнений первого порядка:

$$\dot{n}_I = -\sum_{J=1}^{N} a_0 \exp\left(-\frac{\Delta W_{I\to J}}{kT}\right) n_J = \\ = -\sum_{J=1}^{N} a_{I\to J} n_J, \qquad (59)$$

где $\Delta W_{I\to J}$ – энергия активации при переходе из I-го местоположения дефекта в J-е; $a_{I\to J}$ – вероятность переориентации диполя из I в J в единицу времени; T – температура; $k = 1{,}38\cdot 10^{-23}$ Дж/К – постоянная Больцмана.

В случае сложного непропорционального многоосного нагружения, модель (59) может приводить к нарушению диссипативного неравенства. Поэтому в данной работе на основе формализма, описанного выше в разделе «Модель без учета дефектов», предложено термодинамически согласованное обобщение.

Вместо уравнения эволюции (59) предлагается использовать уравнение, аналогичное по структуре равенству (24):

$$\dot{n}^{J\to I} = \begin{cases} A^{J\to I}\left(\dfrac{H^{J\to I}}{H_c^{J\to I}}\right)^l \left(\dfrac{n_J}{n_0}\right)^q, \\ G_d^{J\to I} \ge 0; \\ 0,\ G_d^{J\to I} < 0, \end{cases} \qquad (60)$$

где $A^{J\to I} > 0,\ H_c^{J\to I} > 0,\ l > 0,\ q > 0,\ n_0 > 0$ – константы материала.

Скорость изменения концентрации I-го варианта дефектов выражается на основе равенства, аналогичного (11):

$$\dot{n}_I = \sum_{\substack{J=1 \\ J\ne I}}^{L} \left(\dot{n}^{J\to I} - \dot{n}^{I\to J}\right).$$

Движущая сила $H^{J\to I}$, получаемая в результате подстановки сумм (56), (57) в выражение (39) и сопряженная с величиной $n^{J\to I}$, в контексте равенства

$$\delta_d = \left(\boldsymbol{\sigma} - \frac{\partial\Psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^d}\right)\cdot\cdot\,\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^d + \\ + \left(\mathbf{E} - \frac{\partial\Psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^d}\right)\cdot\dot{\mathbf{P}}^d = \sum_{I=1}^{N}\sum_{\substack{J=1 \\ J\ne I}}^{N} H^{J\to I}\dot{n}^{J\to I},$$

определяется выражением:

$$H^{J\to I} = \left(\boldsymbol{\sigma} - \frac{\partial\Psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^d}\right)\cdot\cdot\,\Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^d_{J\to I} + \\ + \left(\mathbf{E} - \frac{\partial\Psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^d}\right)\cdot\Delta\tilde{\mathbf{P}}^d_{J\to I}, \qquad (61)$$

где $\Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^d_{J\to I} = \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^d_I - \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^d_J,\ \Delta\tilde{\mathbf{P}}^d_{J\to I} = \tilde{\mathbf{P}}^d_I - \tilde{\mathbf{P}}^d_J$ – константы материала, характеризующие изменение характеристик дипольного дефекта при изменении местоположения кислородной вакансии в кристаллической решетке.

Важно отметить, что в качестве компонент выражений движущих сил для феноменологической модели (48) и для микроструктурной модели (61) выступают выражения

$$\boldsymbol{\sigma} - \frac{\partial\Psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^d},\ \mathbf{E} - \frac{\partial\Psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^d}.$$

Степенную зависимость $\dot{n}^{J\to I}$ от $H^{J\to I}$ в уравнении (60) можно получить, если ввести предположение

$$\Delta W^{J\to I} = \Delta W_0^{J\to I}\left[1 - \left(\frac{H^{J\to I}}{H_c^{J\to I}}\right)^p\right]$$

в уравнении (59) и использовать условие близости $H^{J\to I}$ к $H_c^{J\to I}$, на основе следующего преобразования:

$$\exp\left(-\frac{\Delta W^{J\to I}}{kT}\right) = \\ = \exp\left\{-\frac{\Delta W_0^{J\to I}}{kT}\left[1 - \left(\frac{H^{J\to I}}{H_c^{J\to I}}\right)^p\right]\right\} = \\ = \exp\left[\left(\frac{H^{J\to I}}{H_c^{J\to I}}\right)^p - 1\right]^{\frac{\Delta W_0^{J\to I}}{kT}} \approx \left(\frac{H^{J\to I}}{H_c^{J\to I}}\right)^{\frac{p\Delta W_0^{J\to I}}{kT}}.$$

В случае представления свободной энергии дефектов ψ_{defect} в виде квадратичной формы (34), с учетом анизотропии и взаимного влияния электрических и механических процессов дефектообразования, выражение для $H^{J\to I}$ (61) принимает вид:

$$\begin{aligned} H^{J\to I} &= \Big(\boldsymbol{\sigma} - \boldsymbol{\varepsilon}^d \cdot\cdot\, {}^4\mathbf{Q}_\varepsilon - \mathbf{P}^d \cdot {}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon} - \\ &- \boldsymbol{\varepsilon}^r \cdot\cdot\, {}^4\mathbf{L}_\varepsilon^T - \mathbf{P}^r \cdot {}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}\Big) \cdot\cdot\, \Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^d + \\ &+ \Big(\mathbf{E} - \boldsymbol{\varepsilon}^d \cdot\cdot\, {}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon}^T - \mathbf{P}^d \cdot \mathbf{Q}_P - \\ &- \boldsymbol{\varepsilon}^r \cdot\cdot\, {}^4\mathbf{L}_{P\varepsilon}^T - \mathbf{P}^r \cdot \mathbf{L}_P^T\Big) \cdot \Delta\tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^d. \end{aligned} \tag{62}$$

В простейшем случае представления свободной энергии ψ_{defect} в изотропном приближении (36), равенство (62) упрощается:

$$\begin{aligned} H^{J\to I} &= \Big(\boldsymbol{\sigma} - Q_1^\varepsilon \mathbf{1}\mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^d - 2Q_2^\varepsilon \boldsymbol{\varepsilon}^d - \\ &- L_1^\varepsilon \mathbf{1}\mathrm{tr}\boldsymbol{\varepsilon}^r - 2L_2^\varepsilon \boldsymbol{\varepsilon}^r\Big) \cdot\cdot\, \Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^d + \\ &+ \Big(\mathbf{E} - Q^P \mathbf{P}^d - L^P \mathbf{P}^r\Big) \cdot \Delta\tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^d. \end{aligned} \tag{63}$$

Выражение (63) не учитывает перекрестное влияние механических и электрических полей и содержит те же 6 скалярных параметров материала

$$Q_1^\varepsilon,\, Q_2^\varepsilon,\, L_1^\varepsilon,\, L_2^\varepsilon,\, Q^P,\, L^P,$$

входящих в уравнения феноменологической модели (52).

Обе рассмотренные модели эволюции дефектов: феноменологическая (48) – (52) (без учета особенностей ориентаций дипольного дефекта) и микроструктурная (56) – (63) (с учетом дискретного характера возможных ориентаций дипольного дефекта в элементарной ячейке) – это модели релаксационного типа, отражающие стремление системы к равновесию при изменении внешнего воздействия; они удовлетворяют условию неотрицательности диссипации при произвольном многоосном нагружении.

Метод двухуровневой гомогенизации

Анализ поведения поликристаллической сегнетопьезокерамики приводит к необходимости рассмотрения трех характерных структурных уровней: микро- (домен), мезо- (кристаллит), макро- (поликристалл) и установлению связей между переменными на различных уровнях (двухуровневая гомогенизация) (рис. 1).

Связь между переменными мезоуровня $\{\boldsymbol{\varepsilon}, \boldsymbol{\sigma}, \mathbf{D}, \mathbf{E}\}$, описывающими поведение кристаллита, и микроуровня $\{\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}, \tilde{\boldsymbol{\sigma}}, \tilde{\mathbf{D}}, \tilde{\mathbf{E}}\}$, описывающими поведение домена, определяется аналитически в рамках подхода Рейсса уравнениями:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \frac{1}{V_{\mathrm{RVC}}} \int\limits_{V_{\mathrm{RVC}}} \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}\, dV = \sum_{I=1}^{N} c_I \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I, \qquad \boldsymbol{\sigma} = \frac{1}{V_{\mathrm{RVC}}} \int\limits_{V_{\mathrm{RVC}}} \tilde{\boldsymbol{\sigma}}\, dV \equiv \tilde{\boldsymbol{\sigma}}, \tag{64}$$

$$\mathbf{D} = \frac{1}{V_{\mathrm{RVC}}} \int\limits_{V_{\mathrm{RVC}}} \tilde{\mathbf{D}}\, dV = \sum_{I=1}^{N} c_I \tilde{\mathbf{D}}_I, \qquad \mathbf{E} = \frac{1}{V_{\mathrm{RVC}}} \int\limits_{V_{\mathrm{RVC}}} \tilde{\mathbf{E}}\, dV \equiv \tilde{\mathbf{E}}, \tag{65}$$

где V_{RVC} – представительный объем кристаллита (зерна).

Определяющие уравнения, рассмотренные в двух предыдущих разделах, соответствуют мезоуровню и описывают поведение кристаллита.

Связь между переменными макроуровня $\{\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}, \bar{\boldsymbol{\sigma}}, \bar{\mathbf{D}}, \bar{\mathbf{E}}\}$, описывающими поведение поликристалла, и переменными мезоуровня $\{\boldsymbol{\varepsilon}, \boldsymbol{\sigma}, \mathbf{D}, \mathbf{E}\}$ определяется уравнениями:

$$\bar{\boldsymbol{\varepsilon}} = \frac{1}{V_{\mathrm{RVP}}} \int\limits_{V_{\mathrm{RVP}}} \boldsymbol{\varepsilon}\, dV, \quad \bar{\boldsymbol{\sigma}} = \frac{1}{V_{\mathrm{RVP}}} \int\limits_{V_{\mathrm{RVP}}} \boldsymbol{\sigma}\, dV, \tag{66}$$

$$\bar{\mathbf{D}} = \frac{1}{V_{\mathrm{RVP}}} \int\limits_{V_{\mathrm{RVP}}} \mathbf{D}\, dV, \quad \bar{\mathbf{E}} = \frac{1}{V_{\mathrm{RVP}}} \int\limits_{V_{\mathrm{RVP}}} \mathbf{E}\, dV, \tag{67}$$

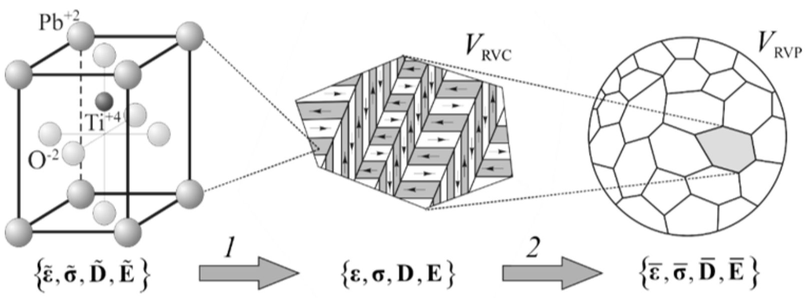


Рис. 1. Микро- (*a*), мезо- (*b*) и макро-(*c*) уровни структуры поликристаллической сегнетопьезокерамики, а также соответствующие уровни (*1*, *2*) гомогенизации.
Показаны элементарная ячейка/атомы (*a*), кристаллит/домены (*b*) и поликристалл/кристаллиты (*c*); V_{RVC}, V_{RVP} – представительные объемы кристаллита и поликристалла соответственно

где V_{RVP} – представительный объем поликристалла.

В целях наиболее точного учета взаимного влияния различно ориентированных кристаллитов в поликристалле, оказывающего существенное влияние на гистерезисное поведение сегнетоэлектроупругих материалов, осреднения (66), (67) выполняются в данной работе на основе метода конечно-элементной гомогенизации [8, 11].

Верификация микроструктурной модели с учетом дефектов

Микроструктурные модели сегнетоэлектроупругого поведения материала с учетом эволюции дефектов, предложенные в разделе «Модель с учетом дефектов», были имплементированы в конечно-элементном (КЭ) программном комплексе PANTOCRATOR [39, 40]. С его использованием были проведены многочисленные вычислительные эксперименты для различных программ электромеханического нагружения представительного объема поликристалла. При получении КЭ-решений нелинейных связанных электромеханических краевых задач использовалась векторно-потенциальная формулировка [40 – 42], позволяющая обеспечивать сходимость итерационных процедур нелинейного решения краевой задачи при больших шагах интегрирования, и метод возвратных отображений [40, 43], дающий высокую точность интегрирования нелинейных дифференциально-алгебраических определяющих уравнений.

С целью верификации микроструктурной модели, для учета наличия дефектов проведено сравнение результатов расчета с данными экспериментальных исследований для различных материалов: $BaTiO_3$ [15, 18], PMN-PZT [24], PZT PIC151 [21] и KTS [27]. Были рассмотрены поли- и монокристаллические материалы с тетрагональной, ромбоэдрической и орторомбической структурами. При анализе поликристаллических материалов, при проведении вычислительных экспериментов использовался представительный объем поликристалла с разбиением 3 × 3 × 3 элементов, содержащий 216 кристаллитов (см. подробности в работе [11]) и представляющий компромиссное решение между точностью решения (погрешность менее 5%) и временем счета нелинейной краевой задачи при многошаговом циклическом нагружении (3 – 4 ч на PC Intel Core i9-9900K 3.6 ГГц, 32 Гб RAM для одного цикла нагружения).

На рис. 2,*a* показано сравнение результатов КЭ-моделирования поведения образцов из поликристаллического $BaTiO_3$, легированного Ni^{2+}(1 %-я акцепторная примесь), для дефектосодержащего (подвергнут старению при температуре 45 °С в течение 15 мин после предварительной

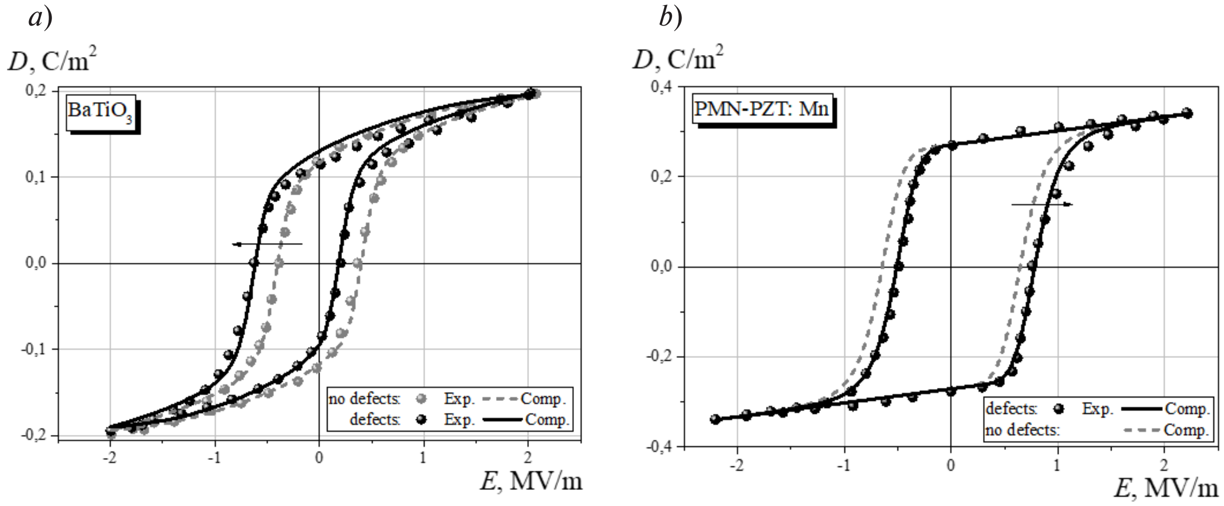


Рис. 2. Сравнение результатов КЭ-расчетов (линии) на основе модели материала, учитывающей отсутствие либо наличие полярных точечных дефектов, с экспериментами (символы) для поликристаллического $BaTiO_3$, легированного Ni [15] (*a*), и монокристаллического PMN-PZT, легированного Mn [24] (*b*)

поляризации) и бездефектного материалов, при циклическом электрическом нагружении амплитудой E_{max} = 2 МВ/м и частотой f = 1 Гц, с результатами экспериментов работы [15]. В расчетах использовалась модель материала тетрагональной структуры с труднопереключаемыми полярными дефектами (см. формулы (44), (45)) с константами материала для $BaTiO_3$ (см. таблицу). Расчетные кривые диэлектрического гистерезиса (рис. 2,*a*) демонстрируют хорошее совпадение с результатами эксперимента как для дефектного, так и для бездефектного материалов. Наличие упорядоченных полярных точечных дефектов приводит к возникновению внутреннего поля смещения и, как следствие этого, к затруднению процесса переключения и повышению коэрцитивного поля при совпадении направления поляризации дефектов с направлением внешнего электрического поля (т. е. при $E < 0$, в рассматриваемом случае $E_d = -0{,}22$ МВ/м) и облегчению обратного переключения и уменьшению коэрцитивного поля при противоположном направлении электрического поля (т. е. при $E > 0$). В результате петля гистерезиса для материала с дефектами смещается на величину E_d влево (при $E_d < 0$) по отношению к центрально-симметричной петле гистерезиса бездефектного материала (см. рис. 2,*a*). Смещение E_d составляет около трети ширины петли диэлектрического гистерезиса, или 0,68 E_c.

На рис. 2,*b* показано сравнение результатов моделирования поведения образцов монокристаллического пьезоэлектрического материала $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$-$Pb(Zr,Ti)O_3$ (сокращенное наименование PMN-PZT), легированного Mn^{2+} (1 %-я акцепторная примесь) с ориентацией [001], при циклическом нагружении электрическим полем амплитудой E_{max} = 2,2 МВ/м и частотой f = 1 Гц с результатами экспериментов работы [24]. В расчетах использовалась модель материала ромбоэдрической структуры (см. формулы (44), (45)) с константами материала (см. таблицу). Дефектное состояние характеризуется величиной $E_d = +0{,}14$ МВ/м^3. Расчетные кривые диэлектрического гистерезиса (см. рис. 2,*b*) демонстрируют визуальное совпадение с результатами эксперимента. Вследствие положительного значения E_d, петля гистерезиса смещается вправо по отношению к началу координат. Смещение составляет 0,12 ширины петли, или 0,24 E_c.

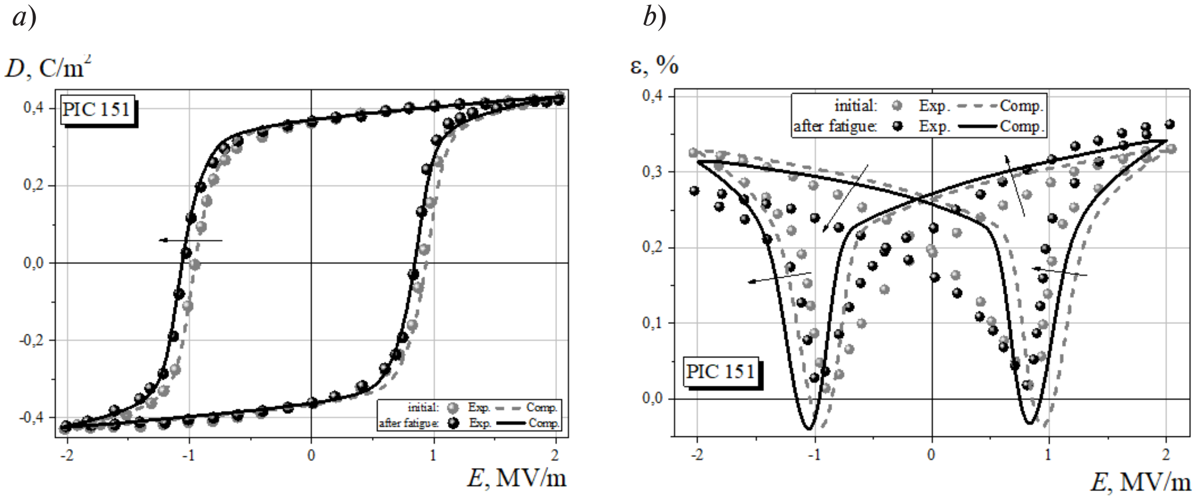


Рис. 3. Сравнение результатов КЭ-расчетов (линии) на основе модели, учитывающей наличие полярных точечных дефектов, с экспериментами [21] (символы) для диэлектрического (a) и электромеханического (b) гистерезисов в материале PZT PIC 151 до и после циклического нагружения

Таблица

Константы материалов, использованные в КЭ-расчетах

Величина	Обозначение	Единица измерения	Значение для материала			
			$BaTiO_3$	PMN-PZT	PIC 151	KTS
Упругий модуль	$\tilde{C}^E_{3333}$ $\tilde{C}^E_{1133}$ $\tilde{C}^E_{1313}$	ГПа	150 60,0 42,9	112 108 69	126 53,3 35,4	– – 0,8
Диэлектрическая проницаемость	$\tilde{\kappa}^\sigma_{33}$	нФ/м	10,7	30,1	22	–
Пьезоэлектрический модуль	$\tilde{d}_{333}$	пм/В	415	320	315	–
Спонтанные поляризация и деформация	$\tilde{P}_0$ $\tilde{\varepsilon}_0$	Кл/м² %	0,26 0,3	0,47 0,3	0,5/0,5 1,91/0,55	– 0,48
Критическая движущая сила	G_c^{90} G_c^{71} G_c^{60}	МДж/м³	0,088 – –	– 0,26 –	0,5 0,5 –	– – 0,003
Показатель степени уравнения эволюции	n m	–	4 2	5 2	12 1,5	5 8
Внутреннее поле смещения	E_d σ_d	МВ/м МПа	–0,22 –	+0,14 –	–0,11 –	– +0,005

На рис. 3 показано сравнение результатов КЭ-моделирования поведения поликристаллической керамики

$$Pb_{0,99}[Zr_{0,45}Ti_{0,47}(Ni_{0,33}Sb_{0,67})_{0,08}]O_3$$

(сокращенное наименование PZT PIC 151) в исходном состоянии (на первом цикле нагружения) и после 10^9 циклов электрического нагружения (f = 50 Гц) с результатами эксперимента работы [21]. В расчетах использовалась модель материала тетрагональной/ромбоэдрической смеси (17 % / 83 %), адекватно описывающей поведение пьезокерамики вблизи морфотропной фазовой границы, с учетом дефектов на основе уравнений (44), (45) с константами материала, приведенными в таблице. Дефектное состояние характеризуется значением электрического поля E_d = –0,11 МВ/м^3. Сравнение расчетных кривых диэлектрического гистерезиса с результатами эксперимента [21] демонстрирует хорошее совпадение (рис. 3,*a*). Петля гистерезиса для материала с дефектами смещается влево на 0,11 ширины петли,или на 0,22 E_c.

При рассмотрении кривых электромеханического гистерезиса для материала PZT PIC151 точность прогноза модели оказывается несколько ниже (см. рис. 3,*b*), чем для диэлектрического гистерезиса (см. рис. 3,*a*). Однако поведение модели корректно отражает все основные тенденции изменения петли гистерезиса при появлении полярных дефектов: ее смещение влево (E_d = –0,11 МВ/м^3 < 0), повышение уровня деформаций в правом крыле и понижение в левом.

На рис. 4 показано сравнение результатов моделирования механического поведения образцов из монокристаллического тригидроселенита калия $KH_3(SeO_3)_2$ (сокращенное наименование KTS), легированного хромом (Cr^{3+}), при циклическом механическом нагружении (закручивании) амплитудой τ_{13} = 0,27 МПа и частотой f = 0,01 Гц при температуре 206,6 К (точка Кюри T_c = 211 К) с результатами экспериментов работы [27]. KTS представляет собой чистый сегнетоэластик, не обладающий сегнетоэлектрическими свойствами. При температуре T_c = 211 К у него наблюдается структурный фазовый переход 2-го рода (изменение симметрии $mmm \to \to m/2$ из орторомбической в моноклинную).

В расчетах использовалась модель материала орторомбической структуры с труднопереключаемыми полярными дефектами (44), (45) с константами материала при рассматриваемой температуре (см. таблицу). Расчетные кривые диэлектрического гистерезиса (см. рис. 4) демонстрируют удовлетворительное совпадение с результатами эксперимента. Петля гистерезиса для материала с дефектами смещается вправо на величину σ_d ($\sigma_d > 0$). Смещение составляет около четверти ширины петли механического гистерезиса, или 0,44 σ_c.

Представленные выше результаты получены на основе модели с неизменяющимися (труднопереключаемыми) дефектами (см. формулы (44), (45)). Данная модель позволяет адекватно описать гистерезисные явления при условии многократного превышения времени переориентации дефекта (см. формулы (54)) над временем цикла нагружения: $\tau_P >> t_c$. В этих условиях более сложная модель с изменяющимися дефектами (см. формулы (44), (45), (52)) приводит к совпадающим результатам. Для малых или сопоставимых времен переориентации дефекта, а также в условиях сложных программ нагружения необходимо использовать модель с изменяющимися дефектами. Последняя позволяет описать эволюцию поляризации и деформации дефектов, а также динамику изменения полей смещения.

Результаты, полученные с использованием модели с изменяющимися дефектами (52), представлены на рис. 5, где показано изменение поля смещения E_d при старении в течении 15 мин при отсутствии поля ($E = = 0$) после предварительной поляризации $P^r \neq 0$ для титаната бария, рассмотренного в первом примере (см. рис. 2,*a*). Варьирование параметра Q^P показывает, что при значении $Q^P = 10^7$ м/Ф наблюдается результат, близкий к экспериментальному: $E_d \approx -0{,}22$ МВ/м. В

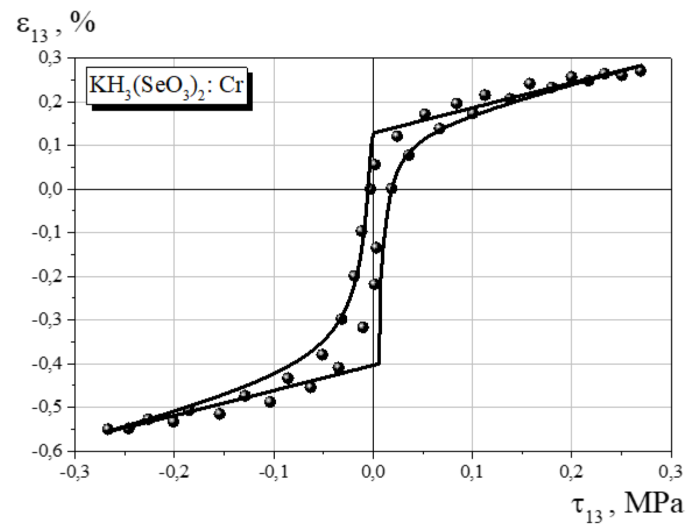


Рис. 4. Сравнение с экспериментом [27] (символы) результатов расчетов (линии) механического гистерезиса в монокристаллическом $KH_3(SeO_3)_2$, легированном хромом (ориентация [001])

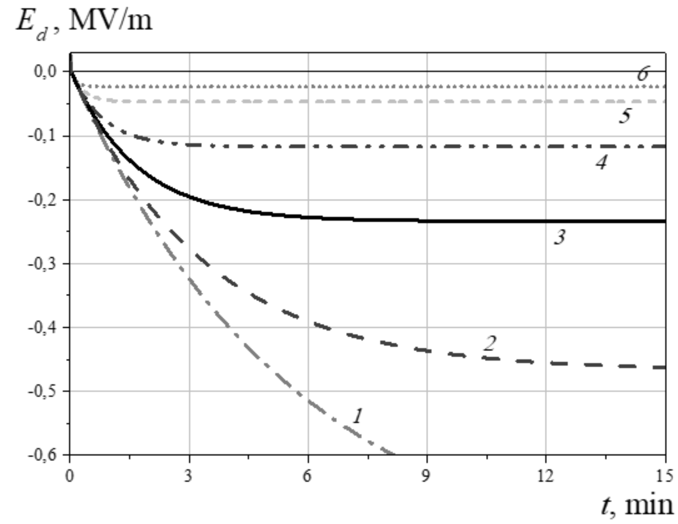


Рис. 5. Эволюция поля смещения при старении $BaTiO_3$, рассчитанная по модели с изменяющимися дефектами (система уравнений (52)) для различных значений параметра Q^P, Мм/Ф: 3 (*1*), 5 (*2*), 10 (*3*), 20 (*4*), 50 (*5*), 100 (*6*);
соответствующие значения τ_p, с: 333 (*1*), 200 (*2*), 100 (*3*), 50 (*4*), 20 (*5*), 10 (*6*)

расчетах использовались следующие значения параметров:

$$B^P = 10^{-9}\ \text{Ф/(м·с)},\ L^P = 3\cdot 10^6\ \text{м/Ф},$$

$$P^r = 0{,}26\ \text{Кл/м}^2.$$

Важно отметить, что кривые, представленные на рис. 5, демонстрируют начальный экспоненциальный рост с последующим переходом в режим насыщения, в соответствии с зависимостью

$$1 - \exp(-t/\tau_p). \qquad (68)$$

Аналогичный результат наблюдается при анализе экспериментальных данных в работах [17] (см. рис. 5), [15] (см. рис. 2 и 3), [16] (см. там рис. 46 и уравнение (6)).

Как видно из рис. 5, при значительных временах старения, например при $t > 5\tau_p$, на-

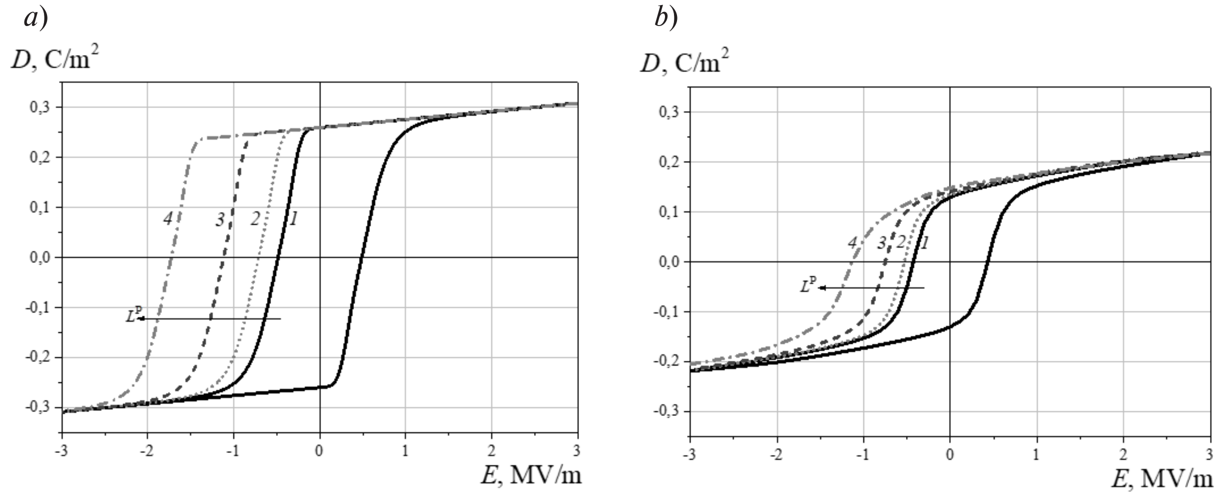


Рис. 6. Влияние значения параметра L^P в модели с изменяющимися дефектами (система уравнений (52)) на смещения петли по горизонтали и диэлектрического гистерезиса для монокристаллического (*a*) и поликристаллического (*b*) $BaTiO_3$; значения L^P, Мм/Ф: 0 (*1*), 3 (*2*), 5 (*3*), 7 (*4*)

блюдается режим насыщения. Для описания поведения материала в этом случае достаточно использовать модель с неизменяющимися дефектами (см. формулы (44), (45)).

Идентификацию трех констант феноменологической модели B^P, L^P и Q^P можно осуществить на основе двух опытов с различными уровнями постоянного электрического воздействия (при старении), по кривым эволюции поля смещения, определяемым на основе первого выражения из системы (55) и третьего из (47):

$$E_d = L^P \big/ Q^P \left(E - L^P P^r\right)\left(1 - e^{-tB^P Q^P}\right).$$

Время релаксации

$$\tau_P = \frac{1}{B^P Q^P}$$

определяется по кривой эволюции поля смещения как время достижения уровня 0,632 от уровня насыщения:

$$E_d\left(\tau_P\right) \big/ E_d\left(\infty\right) = 1 - e^{-1} \approx 0,632.$$

Параметр L^P оказывает нелинейное влияние на величину поля смещения E_d. На рис. 6 представлены результаты расчетов петель диэлектрического гистерезиса после старения в течении 15 мин для монокристаллического и поликристаллического титанатов бария, при различных значениях параметра L^P. Во избежание громоздкости представления, на рис. 6 показан начальный (несмещенный) гистерезис при $L^P = 0$ и только ниспадающие (левые) ветви гистерезисов при $L^P \neq 0$. При изменении L^P ширина петли практически не меняется. С ростом L^P наблюдается прогрессирующее смещение петли гистерезиса влево. Величина смещения пропорциональна квадрату L^P:

$$E_d \sim P_0^r \left(L^P\right)^2 \big/ Q^P.$$

При одноосном пропорциональном нагружении, прогнозы феноменологической и микроструктурной моделей эволюции точечных дефектов (см. формулы (48) – (52) и (56) – (63) соответственно) приводят при соответствующем выборе констант материала к близким результатам.

Заключение

Предложена термодинамически согласованная микроструктурная модель сегнетоэлектроупругого материала с учетом эволюции полярных точечных дефектов, позволяющая описать гистерезисное поведение моно- и поликристаллических сегнетоэлектроупругих материалов в условиях произвольных программ сложного многоосного комбинированного электрического и/или механического нагружения. Модель учитывает многофазный состав (тетрагональные, ромбоэдрические и орторомбические фазы и их смеси), анизотропию свойств, доменную структуру и диссипативный характер движения доменных стенок.

Рассмотрены две формулировки уравнений эволюции дефектов, удовлетворяющие термодинамическим ограничениям:

феноменологическая (без учета особенностей ориентаций дипольного дефекта);

микроструктурная (с учетом дискретного характера возможных ориентаций дипольного дефекта в элементарной ячейке).

В результате выбора свободной энергии дефектов в виде квадратичной формы поляризации и деформации дефектов, получены определяющие уравнения линейной теории эволюции заряженных точечных дефектов, удовлетворяющие диссипативному неравенству при неотрицательно определенных тензорных коэффициентах.

Отдельно рассмотрены случаи изменяющихся и неизменяющихся дефектов.

Исследовано влияние полярных точечных дефектов на процессы переключения. Показана зависимость величины смещения петель гистерезиса от параметров свободной энергии дефектов.

Учет взаимного влияния кристаллитов в поликристалле произведен на основе использования в расчетах метода двухуровневой конечно-элементной гомогенизации.

Важность учета наличия и эволюции точечных дефектов в модели обусловлена их появлением при использовании донорных или акцепторных добавок, повсеместно применяемых в современных пьезокерамических материалах для улучшения их эксплуатационных свойств и оказывающих существенное влияние на процессы деградации свойств при старении и усталости.

Сравнение результатов расчетов с использованием предложенной модели и экспериментальных кривых диэлектрического, электромеханического и механического гистерезисов для поликристаллических PZT PIC 151 и $BaTiO_3$, монокристаллических PMN-PZT и KTS, легированных акцепторными добавками, показало хорошее совпадение.

Дальнейшее развитие модели связано с ее обобщением на неизотермический случай, с рассмотрением неквадратичной свободной энергии дефектов, с учетом миграции различных типов вакансий, с попыткой описания эффекта деэйджинга при интенсивном циклическом воздействии, а также с расширением верификационной базы модели на случай бессвинцовых пьезоактивных и родственных им материалов.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РФФИ № 19-08-01252.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Лайнс М., Гласс А.** Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. М.: Мир, 1981. 736 с.

2. **Белоконь А.В., Скалиух А.С.** Математическое моделирование необратимых процессов поляризации. М.: Физматлит, 2010. 325 с.

3. **Смоленский Г.А.** Физика сегнетоэлектрических явлений. Ленинград: Наука, 1985. 396 с.

4. **Landis C.M.** Fully coupled, multi-axial, symmetric constitutive laws for polycrystalline ferroelectric ceramics // J. Mech. Phys. Solids. 2002. Vol. 50. No. 1. Pp. 127–152.

5. **Huber J.E., Fleck N.A., Landis C.M., McMeeking R.M.** A constitutive model for ferroelectric polycrystals // J. Mech. Phys. Solids. 1999. Vol. 47. No. 8. Pp. 1663–1697.

6. **Huber J.E., Fleck N.A.** Multi-axial electrical switching of a ferroelectric: Theory versus experiment // J. Mech. Phys. Solids. 2001. Vol. 49. No. 4. Pp. 785–811.

7. **Liskowsky A.C., Semenov A.S., Balke H., McMeeking R.M.** Finite element modeling of the ferroelectroelastic material behavior in considera-

tion of domain wall motions // MRS Online Proceedings Library Archive. Vol. 881. Symposium CC – Coupled Nonlinear Phenomena Modeling and Simulation for Smart, Ferroic and Multiferroic Materials. Cambridge University Press, 2005. CC4.2

8. **Семенов А.С., Бальке Х., Мельников Б.Е.** Моделирование поликристаллической пьезокерамики методом конечно-элементной гомогенизации // Морские интеллектуальные технологии. 2011. № 3 (спецвыпуск). С. 106–112.

9. **Neumeister P., Balke H.** Micromechanical modelling of remanent properties of morphotropic PZT // J. Mech. Phys. Solids. 2011. Vol. 59. No. 9. Pp. 1794–1807.

10. **Pathak A., McMeeking R.M.** Three-dimensional finite element simulations of ferroelectric polycrystals under electrical and mechanical loading // J. Mech. Phys. Solids. 2008. Vol. 56. No. 2. Pp. 663–683.

11. **Семенов А.С.** Микромеханическая модель поликристаллического сегнетоэлектроупругого материала с учетом дефектов // Прикладная механика и техническая физика. 2019. Т. 60. № 6. С. 173–191.

12. **Belov A.Y., Kreher W.S.** Viscoplastic models for ferroelectric ceramics // J. Eur. Ceram. Soc. 2005. Vol. 25. No. 12. Pp. 2567–2571.

13. **Струков Б.А.** Фазовые переходы в сегнетоэлектрических кристаллах с дефектами // Соросовский образовательный журнал. 1996. № 12. С. 95–101.

14. **Lupascu D.C.** Fatigue in ferroelectric ceramics and related issues. Heidelberg: Springer, 2004. 225 p.

15. **Arlt G., Neumann H.** Internal bias in ferroelectric ceramics: Origin and time dependence // Ferroelectrics. 1988. Vol. 87. No. 1. Pp. 109–120.

16. **Genenko Yu.A., Glaum J., Hoffmann M.J., Albe K.** Mechanisms of aging and fatigue in ferroelectrics // Mater. Sci. Eng. B. 2015. Vol. 192. Pp. 52–82.

17. **Neumann H., Arlt G.** Dipole orientation in Cr-modified $BaTiO_3$ ceramics // Ferroelectrics. 1987. Vol. 76. No. 1. Pp. 303–310.

18. **Tan Y.Q., Zhang J.L., Wang C.L.** Aging behaviours of CuO modified $BaTiO_3$ ceramics // Adv. Appl. Ceram. 2014. Vol. 113. No. 4. Pp. 223–227.

19. **Shur V.Y., Rumyantsev E.L., Nikolaeva E., Shishkin E., Baturin I., Shur A., Ozgul M.** Kinetics of fatigue in bulk ferroelectrics // Proc. SPIE. Smart Structures and Materials. SPIE. 2002. Vol. 80. No. 6. Pp.1037–1039.

20. **Lupascu D., Rödel J.** Fatigue in bulk lead zirconate titanate actuator materials // Adv. Eng. Mater. 2005. Vol. 7. No. 10. Pp. 882–898.

21. **Balke N., Lupascu D.C., Granzow T., Rödel J.** Fatigue of lead zirconate titanate ceramics. I: Unipolar and DC loading // J. Am. Ceram. Soc. 2007. Vol. 90. No. 4. Pp. 1081–1087.

22. **Pike G.E., Warren W.L., Dimos D., Tuttle B.A., Ramesh R., Lee J., Keramidas V.G., Evans Jr. J.T.** Voltage offsets in (Pb, La)(Zr, Ti)O_3 thin films // Appl. Phys. Lett. 1995. Vol. 66. No. 4. P. 484.

23. **Du G., Liang R., Wang L., Li K., Zhang W., Wang G., Dong X.** Linear temperature scaling of ferroelectric hysteresis in Mn-doped $Pb(Mn_{1/3}Sb_{2/3})O_3$-$Pb(Zr,Ti)O_3$ ceramic with internal bias field // Appl. Phys. Lett. 2013. Vol. 102. No. 14. P. 142903.

24. **Oh H.T., Lee J.Y., Lee H.Y.** Mn-modified PMN-PZT [$Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$-$Pb(Zr,Ti)O_3$] single crystals for high power piezoelectric transducers // J. Korean Ceram. Soc. 2017. Vol. 54. No. 2. Pp. 150–157.

25. **Luo Z., Glaum J., Granzow T., Jo W., Dittmer R., Hoffman M., Rödel J.** Bipolar and unipolar fatigue of ferroelectric BNT-based lead-free piezoceramics // J. Am. Ceram. Soc. 2011. Vol. 94. No. 2. Pp. 529–535.

26. **Wang H.-Q., Dai Y.-J., Zhang X.-W.** Microstructure and hardening mechanism of $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ lead-free ceramics with CuO doping sintered in different atmospheres // J. Am. Ceram. Soc. 2012. Vol. 95. No. 4. Pp. 1182–1184.

27. **Gridnev S.A., Shuvalov L.A.** The influence of real structure on switching processes and peculiarities of mechanical relaxation in proper ferroelastics $KH_3(SeO_3)_2$ and $KD_3(SeO_3)_2$ // Ferroelectrics. 1983. Vol. 48. No. 1. Pp. 113–129.

28. **Ren X.** Large electric-field-induced strain in ferroelectric crystals by point-defect-mediated reversible domain switching // Nat. Mater. 2004. Vol. 3. No. 2. Pp. 91–94.

29. **Семенов А.С., Мельников Б.Е.** Моделирование процессов неупругого деформирования сегнетоэластиков // Материалы VII Меж-

дународного научного симпозиума «Проблемы прочности, пластичности и устойчивости в механике деформируемого твердого тела». 16 – 17 декабря 2010 г., г. Тверь. Издание Тверского государственного технического университета (ТГТУ), 2011. С. 197–202.

30. **Эшелби Д.** Континуальная теория дислокаций. М.: Изд-во иностранной литературы, 1963. 248 с.

31. **Zhang L., Erdem E., Ren X., Eichel R.-A.** Reorientation of (Mn Ti″ – VO• •)× defect dipoles in acceptor-modified $BaTiO_3$ single crystals: An electron paramagnetic resonance study // Appl. Phys. Lett. 2008. Vol. 93. No. 20. P. 202901.

32. **Feng Z., Ren X.** Aging effect and large recoverable electrostrain in Mn-doped $KNbO_3$-based ferroelectrics // Appl. Phys. Lett. 2007. Vol. 91. No. 3. P. 032904.

33. **Erhart P., Träskelin P., Albe K.** Formation and switching of defect dipoles in acceptor-doped lead titanate: A kinetic model based on first-principles calculations // Phys. Rev. B. 2013. Vol. 88. No. 2. P. 024107.

34. **Genenko Y.A., Lupascu D.C.** Drift of charged defects in local fields as aging mechanism in ferroelectrics // Phys. Rev. B. 2007. Vol. 75. No. 18. P. 184107.

35. **Lambeck P.V., Jonker G.H.** The nature of domain stabilization in ferroelectric perovskites // J. Phys. Chem. Solids. 1986. Vol. 47. No. 5. Pp. 453–461.

36. **Lohkämper R., Neumann H., Arlt G.** Internal bias in acceptor-doped $BaTiO_3$ ceramics: Numerical evaluation of increase and decrease // J. Appl. Phys. 1990. Vol. 68. No. 8. Pp. 4220–4224.

37. **Lambeck P. V., Jonker G.H.** Ferroelectric domain stabilization in $BaTiO_3$ by bulk ordering of defects // Ferroelectrics. 1978. Vol. 22. No. 1. Pp. 729–731.

38. **Nowick A.S., Berry B.S.** Anelastic relaxation in crystalline solids. New York, London: Academic Press, 1972. 694 p.

39. **Семенов А.С.** PANTOCRATOR – конечно-элементный программный комплекс, ориентированный на решение нелинейных задач механики // Труды V Международной конференции «Научно-технические проблемы прогнозирования надежности и долговечности конструкций и методы их решения». 14 – 17 октября 2003 г., Санкт-Петербург, СПбГПУ. СПб.: Изд-во Политехнического ун-та, 2003. С. 466–480.

40. **Semenov A.S., Liskowsky A.C., Balke H.** Return mapping algorithms and consistent tangent operators in ferroelectroelasticity // Int. J. Numer. Methods Eng. 2010. Vol. 81. No. 10. Pp. 1298–1340.

41. **Landis C.M.** A new finite-element formulation for electromechanical boundary value problems // Int. J. Numer. Methods Eng. 2002. Vol. 55. No. 5. Pp. 613–628.

42. **Semenov A.S., Kessler H., Liskowsky A., Balke H.** On a vector potential formulation for 3D electromechanical finite element analysis // Commun. Numer. Methods Eng. 2006. Vol. 22. No. 5. Pp. 357–375.

43. **Семенов А.С., Лисковски А.Ч.,Ноймайстер П., Бальке Х., Ле-Захаров С.А., Додонов П. А., Мельников Б.Е.** Эффективные методы решения нелинейных краевых задач сегнетоэлектроупругости // Морские интеллектуальные технологии. 2010. № 1. С. 55–61.

Статья поступила в редакцию 20.08.2020, принята к публикации 20.12.2020.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРЕ

СЕМЕНОВ Артем Семенович – *кандидат физико-математических наук, доцент Высшей школы механики и процессов управления, заведующий кафедрой сопротивления материалов Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

Semenov.Artem@googlemail.com

REFERENCES

1. **Lines M.E., Glass A.M.,** Principles and application of ferroelectrics and related materials, Oxford University Press, Oxford, 1977.

2. **Belokon A.V., Skaliukh A.S.,** Matematicheskoye modelirovaniye neobratimykh protsessov polyarizatsii [Mathematical modeling of irreversible polarization processes], Fizmatlit, Moscow, 2010 (in Russian).

3. **Smolenskiy G.A.,** Fizika segnetoelektricheskikh yavleniy [Physics of ferroelectric phenomena], Nauka, Leningrad, 1985 (in Russian).

4. **Landis C.M.,** Fully coupled, multi-axial, symmetric constitutive laws for polycrystalline ferroelectric ceramics, J. Mech. Phys. Solids. 50 (1) (2002) 127–152.

5. **Huber J.E., Fleck N.A., Landis C.M., McMeeking R.M.** A constitutive model for ferroelectric polycrystals, J. Mech. Phys. Solids. 47 (8) (1999) 1663–1697.

6. **Huber J.E., Fleck N.A.,** Multi-axial electrical switching of a ferroelectric: Theory versus experiment, J. Mech. Phys. Solids. 49 (4) (2001) 785–811.

7. **Liskowsky A.C., Semenov A.S., Balke H., McMeeking R.M.,** Finite element modeling of the ferroelectroelastic material behavior in consideration of domain wall motions, MRS Online Proceedings Library Archive. Vol. 881. Symposium CC – Coupled Nonlinear Phenomena Modeling and Simulation for Smart, Ferroic and Multiferroic Materials, Cambridge University Press, 2005, CC4.2.

8. **Semenov A.S., Balke H., Melnikov B.E.,** Simulation of polycrystalline piezoceramics by finite element homogenization, Marine Intellectual Technologies. (3, special issue) (2011) 106–112 (in Russian).

9. **Neumeister P., Balke H.,** Micromechanical modelling of remanent properties of morphotropic PZT, J. Mech. Phys. Solids. 59 (9) (2011) 1794–1807.

10. **Pathak A., McMeeking R.M.,** Three-dimensional finite element simulations of ferroelectric polycrystals under electrical and mechanical loading, J. Mech. Phys. Solids. 56 (2) (2008) 663–683.

11. **Semenov A.S.,** Micromechanical model of polycrystalline ferroelectroelastic material with account of defects, J. Appl. Mech. Techn. Phys. 60 (6) (2019) 1125–1140.

12. **Belov A.Y., Kreher W.S.,** Viscoplastic models for ferroelectric ceramics, J. Eur. Ceram. Soc. 25 (12) (2005) 2567–2571.

13. **Strukov B.A.,** Fazovyye perekhody v segnetoelektricheskikh kristallakh s defektami [Phase transitions in ferroelectric crystals with defects], Sorosovskiy Obrazovatelnyy Zhurnal. (12) (1996) 95–101 (in Russian).

14. **Lupascu D.C.,** Fatigue in ferroelectric ceramics and related issues, Springer, Heidelberg, 2004.

15. **Arlt G., Neumann H.,** Internal bias in ferroelectric ceramics: Origin and time dependence, Ferroelectrics. 87 (1) (1988) 109–120.

16. **Genenko Yu.A., Glaum J., Hoffmann M.J., Albe K.,** Mechanisms of aging and fatigue in ferroelectrics, Mater. Sci. Eng. B. 192 (February) (2015) 52–82.

17. **Neumann H., Arlt G.,** Dipole orientation in Cr-modified $BaTiO_3$ ceramics, Ferroelectrics. 76 (1) (1987) 303–310.

18. **Tan Y.Q., Zhang J.L., Wang C.L.,** Aging behaviours of CuO modified $BaTiO_3$ ceramics, Adv. Appl. Ceram. 113 (4) (2014) 223–227.

19. **Shur V.Y., Rumyantsev E.L., Nikolaeva E., et. al.,** Kinetics of fatigue in bulk ferroelectrics, Proc. SPIE. Smart Structures and Materials. SPIE. (2002) 1037–1039.

20. **Lupascu D., Rödel J.,** Fatigue in bulk lead zirconate titanate actuator materials, Adv. Eng. Mater. 7 (10) (2005) 882–898.

21. **Balke N., Lupascu D.C., Granzow T., Rödel J.,** Fatigue of lead zirconate titanate ceramics. I: Unipolar and DC loading, J. Am. Ceram. Soc. 90 (4) (2007) 1081–1087.

22. **Pike G.E., Warren W.L., Dimos D., et. al.,** Voltage offsets in (Pb, La) $(Zr, Ti)O_3$ thin films, Appl. Phys. Lett. 66 (4) (1995) 484.

23. **Du G., Liang R., Wang L., et. al.,** Linear temperature scaling of ferroelectric hysteresis in Mn-doped $Pb(Mn_{1/3}Sb_{2/3})O_3$-$Pb(Zr,Ti)O_3$ ceramics with internal bias field, Appl. Phys. Lett. 102

(14) (2013) 142903.

24. **Oh H.T., Lee J.Y., Lee H.Y.,** Mn-modified PMN-PZT [$Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$-$Pb(Zr,Ti)O_3$] single crystals for high power piezoelectric transducers, J. Korean Ceram. Soc. 54 (2) (2017) 150–157.

25. **Luo Z., Glaum J., Granzow T., et. al.,** Bipolar and unipolar fatigue of ferroelectric BNT-based lead-free piezoceramics, J. Am. Ceram. Soc. 94 (2) (2011) 529–535.

26. **Wang H.-Q., Dai Y.-J., Zhang X.-W.,** Microstructure and hardening mechanism of $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ lead-free ceramics with CuO doping sintered in different atmospheres, J. Am. Ceram. Soc. 95 (4) (2012) 1182–1184.

27. **Gridnev S.A., Shuvalov L.A.,** The influence of real structure on switching processes and peculiarities of mechanical relaxation in proper ferroelastics $KH_3(SeO_3)_2$ and $KD_3(SeO_3)_2$, Ferroelectrics. 48 (1) (1983) 113–129.

28. **Ren X.,** Large electric-field-induced strain in ferroelectric crystals by point-defect-mediated reversible domain switching, Nat. Mater. 3 (2) (2004) 91–94.

29. **Semenov A.S., Melnikov B.E.,** Modelirovaniye protsessov neuprugogo deformirovaniya segnetoelastikov [Modeling the processes of inelastic deformation of ferroelastics], Proceedings of the 7-th International Scientific Symposium “Problems of Strength, Plasticity and Stability in the Solids Mechanics”, December 16–17, 2010, TSTU Publishing, Tver (2011) 197–202 (in Russian).

30. **Eshelby J.D.,** Kontinualnaya teoriya dislokatsiy [Continual theory of dislocations], Publisher of Foreign Literature, Moscow, 1963 (in Russian).

31. **Zhang L. Erdem E., Ren X., Eichel R.-A.,** Reorientation of (Mn Ti″ – VO• •)× defect dipoles in acceptor-modified $BaTiO_3$ single crystals: An electron paramagnetic resonance study, Appl. Phys. Lett. 93 (20) (2008) 202901.

32. **Feng Z., Ren X.,** Aging effect and large recoverable electrostrain in Mn-doped $KNbO_3$-based ferroelectrics, Appl. Phys. Lett. 91 (3) (2007) 032904.

33. **Erhart P., Träskelin P., Albe K.,** Formation and switching of defect dipoles in acceptor-doped lead titanate: A kinetic model based on first-principles calculations, Phys. Rev. B. 88 (2) (2013) 024107.

34. **Genenko Y.A., Lupascu D.C.,** Drift of charged defects in local fields as aging mechanism in ferroelectrics, Phys. Rev. B. 75 (18) (2007) 184107.

35. **Lambeck P.V., Jonker G.H.,** The nature of domain stabilization in ferroelectric perovskites, J. Phys. Chem. Solids. 47 (5) (1986) 453–461.

36. **Lohkämper R., Neumann H., Arlt G.,** Internal bias in acceptor-doped $BaTiO_3$ ceramics: Numerical evaluation of increase and decrease, J. Appl. Phys. 68 (8) (1990) 4220–4224.

37. **Lambeck P.V., Jonker G.H.,** Ferroelectric domain stabilization in $BaTiO_3$ by bulk ordering of defects, Ferroelectrics. 22 (1) (1978) 729–731.

38. **Nowick A.S., Berry B.S.,** Anelastic relaxation in crystalline solids. Academic Press, New York, London, 1972.

39. **Semenov A.S.,** PANTOCRATOR – finite-element program specialized on the solution of non-linear problems of solid body mechanics, Proceedings of the 5-th International Conference “Assessment of Reliability of Materials and Structures: Problems and Solutions”, October 14–17, 2003, SPb., SPbSPU, Polytechnical University Publishing, St. Petersburg (2003) 466–480.

40. **Semenov A.S., Liskowsky A.C., Balke H.,** Return mapping algorithms and consistent tangent operators in ferroelectroelasticity, Int. J. Numer. Methods Eng. 81 (10) (2010) 1298–1340.

41. **Landis C.M.,** A new finite-element formulation for electromechanical boundary value problems, Int. J. Numer. Methods Eng. 55 (5) (2002) 613–628.

42. **Semenov A.S., Kessler H., Liskowsky A., Balke H.,** On a vector potential formulation for 3D electromechanical finite element analysis, Commun. Numer. Methods Eng. 22 (5) (2006) 357–375.

43. **Semenov A.S., Liskowsky A.C., Neumeister P., et. al.,** Effective methods for solving nonlinear boundary value problems of ferroelectroelasticity, Marine Intellectual Technologies. (1) (2010) 56–61 (in Russian).

Received 20.08.2020, accepted 20.12.2020.

THE AUTHOR

SEMENOV Artem S.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
semenov.artem@googlemail.com

DOI: 10.18721/JPM.14104
УДК 519.6:533.6.011

ТЕСТИРОВАНИЕ ГИБРИДНОГО МЕТОДА КРУПНЫХ ЧАСТИЦ НА ДВУМЕРНЫХ ЗАДАЧАХ РИМАНА

Д.В. Садин, И.О. Голиков, Е.Н. Широкова

Военно-космическая академия имени А.Ф. Можайского,
Санкт-Петербург, Российская Федерация

Изучены возможности гибридного метода крупных частиц с использованием известных и новых задач Римана в двумерных областях. Метод обладает вторым порядком аппроксимации по пространству и времени на гладких решениях. Монотонность решений обеспечивается нелинейной коррекцией искусственной вязкости и гибридизацией конвективных потоков. Детально исследованы центрально-симметричные задачи со сложной ударно-волновой структурой и развитием неустойчивости на контактной границе. Тестовые расчеты продемонстрировали высокую разрешающую способность, малую диссипативность и устойчивость метода.

Ключевые слова: гибридный метод крупных частиц, двумерные задачи Римана, разрешающая способность

Ссылка при цитировании: Садин Д.В., Голиков И.О., Широкова Е.Н. Тестирование гибридного метода крупных частиц на двумерных задачах Римана // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 58–71. DOI: 10.18721/JPM.14104

TESTING OF THE HYBRID LARGE-PARTICLE METHOD USING TWO-DIMENSIONAL RIEMANN PROBLEMS

D.V. Sadin, I.O. Golikov, E.N. Shirokova

Military Space Academy named after A.F. Mozhaysky,
St. Petersburg, Russian Federation

The full potential of the hybrid large-particle method using the known and new Riemann problems in two-dimensional domains has been studied. The method includes a space-time second-order approximation for smooth solutions. Using the artificial viscosity nonlinear correction and the convective fluxes hybridization maintained monotonicity of solutions. Centrally symmetrical problems with a complex shock-wave structure and with the development of instability on the contact boundary were studied in details. The test calculations demonstrated high resolution, low dissipation, and stability of the method.

Keywords: hybrid large-particle method, two-dimensional Riemann problems, high resolution

Citation: Sadin D.V., Golikov I.O., Shirokova E.N., Testing of the hybrid large-particle method using two-dimensional Riemann problems, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 58–71. DOI: 10.18721/JPM.14104

Введение

Вычислительная гидродинамика интенсивно развивается в последние десятилетия, что стимулируется разработкой исследовательских и коммерческих пакетов прикладных программ для расчета и обоснования параметров технических устройств, применяемых в различных технологических процессах, на разных стадиях производства, например в авиастроении, ракетно-космической технике и энергетике.

К настоящему времени сформировался ряд подходов построения дискретных моделей, сохраняющих монотонность и имеющих повышенный порядок аппроксимации для расчетов газодинамических течений. Такие расчеты основаны на точном или приближенном решении распада разрыва (схемы типа Годунова [1 – 3]); схемах с уменьшением полной вариации (TVD-реконструкции, *англ.* Total Variation Diminishing [4 – 6]); взвешенных, существенно неосциллирующих схемах (WENO-схемы, *англ.* Weighted Essentially Non-Oscillatory schemes) на переменных шаблонах [7 – 9]; гибридных алгоритмах [10 – 12], компактных схемах [13 – 15] и др.

Наряду с тенденцией построения схем четвертого, пятого и более высоких порядков аппроксимаций [8, 9, 15], для широкого круга задач сохраняют актуальность дискретные модели второго порядка точности [16 – 20]. Например, достаточно подробное обсуждение таких схем можно найти в работе [19], в которой развивается MUSCL-подход (Monotonic Upstream-Centered Scheme) с применением различных квазиодномерных схем реконструкции.

Гибридный метод крупных частиц был предложен для решения задач динамики многофазных сред на основе схемы с настраиваемыми диссипативными свойствами (*англ.* CDP2 – Customizable Dissipative Properties), которая меняет порядок аппроксимации в зависимости от гладкости решения [21, 22]. Вместе с тем прикладные задачи зачастую содержат области как «чистого» газа, так и зоны течений смеси газа с дисперсной фазой. Поэтому развиваемый метод должен обладать универсальностью и демонстрировать высокую разрешающую способность и монотонность в этих двух случаях. Обязательным требованием к новому численному методу является его проверка на серии тестовых задач в широком диапазоне параметров течения. Ранее метод верифицировался на стандартных одномерных и двумерных тестах [23 – 25].

Достоинства метода перед известными схемами, учитывающими характеристические свойства законов сохранения, заключаются в расширении класса задач с уравнениями как гиперболического, так и смешанного типа с мнимыми компонентами характеристик. Алгоритм гибридного метода крупных частиц дает успешные результаты при решении традиционно сложных вычислительных проблем, таких как образование искусственного пограничного слоя и фиктивной ножки Маха, возникновение ударных волн разрежения, «карбункул»-неустойчивости на гиперзвуковых режимах обтекания, что характерно для схем типа Годунова [26]. Метод обладает алгоритмической простотой, а также хорошим соотношением диссипативных и дисперсионных свойств. Например, в тесте с двойным маховским отражением (*англ.* Double Mach reflection) гибридный метод крупных частиц превосходит по вихреразрешающей способности популярные схемы HLLC (Harten – Lax – van Leer Contact [27]) и WENO5 [11] (см. сопоставление схем в статье [25]).

В настоящей работе проверяются вычислительные свойства (монотонность, диссипативность, вихреразрешающая способность) гибридного метода крупных частиц второго порядка точности по пространству и времени [28] при решении задач Римана в двумерных областях. Результаты сопоставляются с базовым методом [29] и решениями по современным схемам повышенного порядка аппроксимации [15, 30]. Детально рассмотрены вопросы численного воспроизведения сложных ударно-волновых и вихревых структур.

В цитируемых работах тестовые задачи решаются в формулировке Эйлера. Для корректности сравнения наши расчеты также проводятся в невязкой постановке. Это объясняется необходимостью обоснования разрешения сетки для корректного решения уравнений Навье – Стокса при заданном числе Рейнольдса, когда схемная вязкость становится существенно меньше физической [8].

Гибридный метод крупных частиц

Основные уравнения. Рассмотрим законы сохранения калорически совершенного газа в форме уравнений Эйлера:

$$\frac{\partial \mathbf{q}}{\partial t} + \nabla_d \mathbf{G} + \nabla_d \mathbf{F} = 0, \qquad (1)$$

$$\mathbf{q} = \left[\rho, \rho\mathbf{v}, \rho E\right]^T, \ \ \mathbf{G} = \left[\rho\mathbf{v}, \rho\mathbf{v}\mathbf{v}, \rho E\mathbf{v}\right]^T,$$

$$\mathbf{F} = \left[0, p, p\mathbf{v}\right]^T, \quad \nabla_d = \mathrm{diag}\left(\nabla\cdot, \nabla, \nabla\cdot\right),$$

где ρ, $\mathbf{v}$, p, E – плотность, вектор скорости с компонентами u и v, давление, полная энергия газа единицы массы; $\mathbf{q}$, $\mathbf{G}$, $\mathbf{F}$ – консервативные, потоковые, градиентные и деформационные величины соответственно; t – время.

Уравнения (1) записаны в безразмерном виде для искомых функций

$$\rho' = \rho / \Theta_0, \quad p' = p / P_0,$$

$$u' = u \Big/ \sqrt{P_0 / \Theta_0}, \quad v' = v \Big/ \sqrt{P_0 / \Theta_0},$$

относительно произвольных размерных констант Θ_0, P_0.

Координаты отнесены к характерному линейному размеру области определения задачи

$$x' = x/L, \quad y' = y/L,$$

а безразмерное время определяется как

$$t' = t \Big/ \left(L\sqrt{\Theta_0 / P_0}\right).$$

В уравнениях (1) и далее в постановках задач штрихи опущены.

Замыкающее уравнение состояния имеет вид

$$p = (\gamma - 1)\rho\left(E - \mathbf{v}^2/2\right),$$

где γ – показатель адиабаты.

Реализация метода. Запишем алгоритм гибридного метода крупных частиц с настраиваемыми диссипативными свойствами (CDP2 – Customizable Dissipative Properties) в конечно-объемной формулировке на ортогональной равномерной сетке [28].

Схемы формулируются с расщеплением на Лагранжев (0), Эйлеров и заключительный (1) этапы, без ограничения общности в одномерном случае:

$$\mathbf{q}_n^{(0)} = \mathbf{q}_n^k - \left(\mathbf{F}_{n+1/2}^k - \mathbf{F}_{n-1/2}^k\right)\tau / h, \qquad (2)$$

$$\mathbf{q}_n^{(1)} = \mathbf{q}_n^{(0)} - \left(\mathbf{G}_{n+1/2}^{(0)} - \mathbf{G}_{n-1/2}^{(0)}\right)\tau / h. \qquad (3)$$

Для повышения до второго порядка аппроксимации по времени используем корректирующий шаг:

$$\begin{aligned}\mathbf{q}_n^{(2)} &= 0{,}5\left(\mathbf{q}_n^k + \mathbf{q}_n^{(1)}\right) - \\ &- 0{,}5\left(\mathbf{F}_{n+1/2}^{(1)} - \mathbf{F}_{n-1/2}^{(1)}\right)\tau / h,\end{aligned} \qquad (4)$$

$$\begin{aligned}\mathbf{q}_n^{k+1} &= \mathbf{q}_n^{(2)} - \\ &- 0{,}5\left(\mathbf{G}_{n+1/2}^{(2)} - \mathbf{G}_{n-1/2}^{(2)}\right)\tau / h,\end{aligned} \qquad (5)$$

где $\tau = t^{k+1} - t^k$ – шаг по времени (t^k – временной слой); h – размер ячейки с ее центром x_n и гранями

$$x_{n\pm1/2} = x_n \pm h/2.$$

Если величины на гранях ячеек определить как среднее арифметическое в центрах примыкающих ячеек, то получим бездиссипативную, но абсолютно неустойчивую схему второго порядка аппроксимации. В базовом методе крупных частиц потоки рассчитываются с учетом их направлений схемами первого порядка [29].

Нелинейная коррекция метода. Для обеспечения устойчивости и монотонности метода с сохранением второго порядка точности на гладких решениях используется нелинейная коррекция градиентных и деформационных величин $\mathbf{F}_{n\pm1/2}$ и потоков $\mathbf{G}_{n\pm1/2}$.

На Лагражевом этапе (2) в схему

$$\tilde{\mathbf{F}}_{n\pm1/2} = \left[0, \tilde{p}_{n\pm1/2}, \tilde{p}_{n\pm1/2} u^k_{n\pm1/2}\right]^T$$

вносится нелинейная скалярная искусственная вязкость

$$\tilde{p}_{n\pm1/2} = p^k_{n+1/2} + \left[1 - \psi_v(r_{n\pm1/2})\right] Q_{n\pm1/2},$$

где $Q_{n\pm1/2}$ – обычная линейная диссипация, например типа Ландшоффа; $\psi_v(r_{n\pm1/2})$ – ограничитель вязкости с параметром отношения наклонов $r_{n\pm1/2}$.

Параметр $r_{n\pm1/2}$ вычисляется по условию

$$r_{n+1/2} = \begin{cases} \left(u^k_n - u^k_{n-1}\right) \big/ \left(u^k_{n+1} - u^k_n\right), \\ \text{если } \left(u^k_{n+1} - u^k_n\right)\left(p^k_{n+1} - p^k_n\right) \ge 0; \\ \left(u^k_{n+2} - u^k_{n+1}\right) \big/ \left(u^k_{n+1} - u^k_n\right), \\ \text{иначе.} \end{cases}$$

На гладких решениях сохраняется второй порядок аппроксимации:

$$r_{n\pm1/2} \to 1 \;\Rightarrow\; \psi_v(r_{n\pm1/2}) \to 1 \;\Rightarrow$$
$$\tilde{\mathbf{F}}_{n\pm1/2} \to \mathbf{F} + O\left(h^2\right).$$

На Эйлеровом и заключительном этапе (3) рассчитываются примитивные переменные $\varphi = \{\rho, u, E\}$ с использованием гибридной нелинейной коррекции (взвешена ограничителем потоков ψ_f аддитивной комбинации противопоточной и центральной аппроксимаций) с точностью $O(h^2)$ на гладких решениях:

$$\hat{\varphi}_{n+1/2} = \begin{cases} \varphi^+_{n+1/2} \text{ при } u^{(0)}_{n+1/2} \ge 0, \\ \varphi^-_{n+1/2} \text{ иначе;} \end{cases}$$

$$\varphi^+_{n+1/2} = \Big[\left(1 - \psi_f\left(r^+_{n+1/2}\right)\right)\varphi^{(0)}_n +$$
$$+ \psi_f\left(r^+_{n+1/2}\right)\varphi^{(0)}_{n+1/2}\Big];$$

$$\varphi^-_{n+1/2} = \Big[\left(1 - \psi_f\left(r^-_{n+1/2}\right)\right)\varphi^{(0)}_{n+1} +$$
$$+ \psi_f\left(r^-_{n+1/2}\right)\varphi^{(0)}_{n+1/2}\Big];$$

$$r^+_{n+1/2} = \frac{\varphi^{(0)}_n - \varphi^{(0)}_{n-1}}{\varphi^{(0)}_{n+1} - \varphi^{(0)}_n},$$

$$r^-_{n+1/2} = \frac{\varphi^{(0)}_{n+2} - \varphi^{(0)}_{n+1}}{\varphi^{(0)}_{n+1} - \varphi^{(0)}_n}.$$

Затем формируются численные потоки массы

$$\hat{M}^{(0)}_{n\pm1/2} = \hat{\rho}^{(0)}_{n\pm1/2} u^{(0)}_{n\pm1/2}\tau,$$

импульса $\hat{u}^{(0)}_{n\pm1/2}\hat{M}^{(0)}_{n\pm1/2}$ и энергии $\hat{E}^{(0)}_{n\pm1/2}\hat{M}^{(0)}_{n\pm1/2}$ и определяются искомые функции:

$$\rho^{(1)} = \rho^{(0)} + \left(\hat{M}^{(0)}_{n-1/2} - \hat{M}^{(0)}_{n+1/2}\right) \big/ h,$$

$$u^{(1)}_n = \Big[\rho^{(0)}_n u^{(0)}_n + \Big(\hat{u}^{(0)}_{n-1/2}\hat{M}^{(0)}_{n-1/2} -$$
$$- \hat{u}^{(0)}_{n+1/2}\hat{M}^{(0)}_{n+1/2}\Big) \big/ h\Big] \big/ \rho^{(1)}_n,$$

$$E^{(1)}_n = \Big[\rho^{(0)}_n E^{(0)}_n + \Big(\hat{E}^{(0)}_{n-1/2}\hat{M}^{(0)}_{n-1/2} -$$
$$- \hat{E}^{(0)}_{n+1/2}\hat{M}^{(0)}_{n+1/2}\Big) \big/ h\Big] \big/ \rho^{(1)}_n.$$

Для нелинейной коррекции вязкости и потоков пригодны функции лимитирования TVD-типа. Далее используются следующие ограничители:

$$\psi(r) = \begin{cases} \max\left[\min(r, 1), 0\right] \\ (\text{MM} - \text{Minmod}), \\ \left(r + |r|\right) \big/ (1 + r) \\ (\text{VL} - \text{Van Leer}), \\ \max\left[\min(2r, 1), \min(r, 2), 0\right] \\ (\text{SB} - \text{Superbee}), \end{cases}$$

которые будем указывать подстрочными индексами, например $\psi_{v,\text{MM}}$ – ограничитель вязкости Minmod.

Опыт расчетов показал, что ограничители наделяют гибридный метод крупных частиц численной диссипацией в порядке возрастания ее уровня: SB, VL, MM.

На корректирующем шаге (4), (5) расчетные формулы численных градиентов, мощности деформаций и конвективных потоков аналогичны приведенным, с заменой верхних индексов k обозначением (1), (0) – обозначением (2), (1) – обозначением (k + 1). В целом гибридный метод крупных частиц обладает суммарной аппроксимацией второго порядка по пространству и времени $O(h^2 + \tau^2)$ на гладких решениях.

Устойчивость метода. Шаг по времени определяется из условия Куранта – Фридрихса – Леви (CFL):

$$\tau^k = \text{CFL}\frac{h}{\max\limits_{\forall n}\left(\left|u_n^k\right| + a_n^k\right)},$$

где CFL – фиксированное число Куранта, a_n^k – скорость звука.

Численные эксперименты позволили обосновать границу устойчивости гибридного метода крупных частиц как CFL < 0,7. Число Куранта задано в расчетах настоящей работы с учетом надежности и точности алгоритма – CFL = 0,4.

Результаты расчетов и их обсуждение

Рассматриваемые тестовые задачи служат для проверки свойств численных методов по воспроизведению скачков уплотнения, волн разрежения, контактных разрывов и вихревых структур в двумерных областях.

Тесты 3, 4 и 12. Из большой коллекции двумерных задач Римана рассмотрим тесты 3, 4 и 12 [30]. Далее полагаем, что газ – идеальный с показателем адиабаты $\gamma = 1{,}4$. Задачи решаются до момента времени T в квадрате

$$(x, y) \in (0{,}1) \times (0{,}1),$$

который разделен линиями $x = 1/2$ и $y = 1/2$ на четыре квадранта.

В каждом квадранте заданы постоянные начальные условия в безразмерном виде (см. таблицу).

Таблица

Постоянные начальные условия при расчетах для трех тестов

Позиция в квадрантах	Параметр	Значение параметра в тесте и квадрантах					
		Тест 3, T = 0,30		Тест 4, T = 0,25		Тест 12, T = 0,25	
		Сверху	Снизу	Сверху	Снизу	Сверху	Снизу
Слева	p	0,3000	0,0290	0,3500	1,1000	1,0000	1,0000
	ρ	0,5323	0,1380	0,5065	1,1000	1,0000	0,8000
	u	1,2060	1,2060	0,8939	0,8939	0,7276	0,0000
	v	0,0000	1,2060	0,0000	0,8939	0,0000	0,0000
Справа	p	1,5000	0,3000	1,1000	0,3500	0,4000	1,0000
	ρ	1,5000	0,5323	1,1000	0,5065	0,5313	1,0000
	u	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000
	v	0,0000	1,2060	0,0000	0,8939	0,0000	0,7276

Обозначения: p, ρ – безразмерные давление и плотность; u, v – безразмерные компоненты вектора скорости **v**; T – безразмерный момент времени, до которого решались задачи.

Примечания. 1. Квадрат 0,1 × 0,1 разделен на 4 квадранта. 2. Номера тестов соответствуют принятым в работе [30].

Расчеты выполнены гибридным методом крупных частиц на равномерной сетке 400 × × 400 с ограничителями потоков $\psi_{f,\mathrm{VL}}$ и вязкости $\psi_{v,\mathrm{VL}}$ (VL – Ван Леер, тесты 3 и 12), а тест 4 – $\psi_{f,\mathrm{VL}}$, $\psi_{v,\mathrm{MM}}$ (MM – Minmod). На внешних границах заданы «мягкие» краевые условия эстраполяции.

Точные решения для этих задач неизвестны. Численные решения показаны на рис. 1 в виде изолиний плотности и векторов скоростей (стрелки). Для корректности сравнения линии уровня плотности соответствуют приведенным в работе [30].

В рассматриваемых задачах реализуются течения с маховским (рис. 1, *e*, *f*) и двойным маховским (рис. 1, *d*) отражениями, а также конфигурации с близко расположенными контактными разрывами вдоль большей стороны «линзы» (см. рис. 1, *e*, *f*). Для тестов 3 и 12 дополнительно образуются диагонально направленные вихревые струи. В работе [30] обращено внимание на артефакт в тестовой

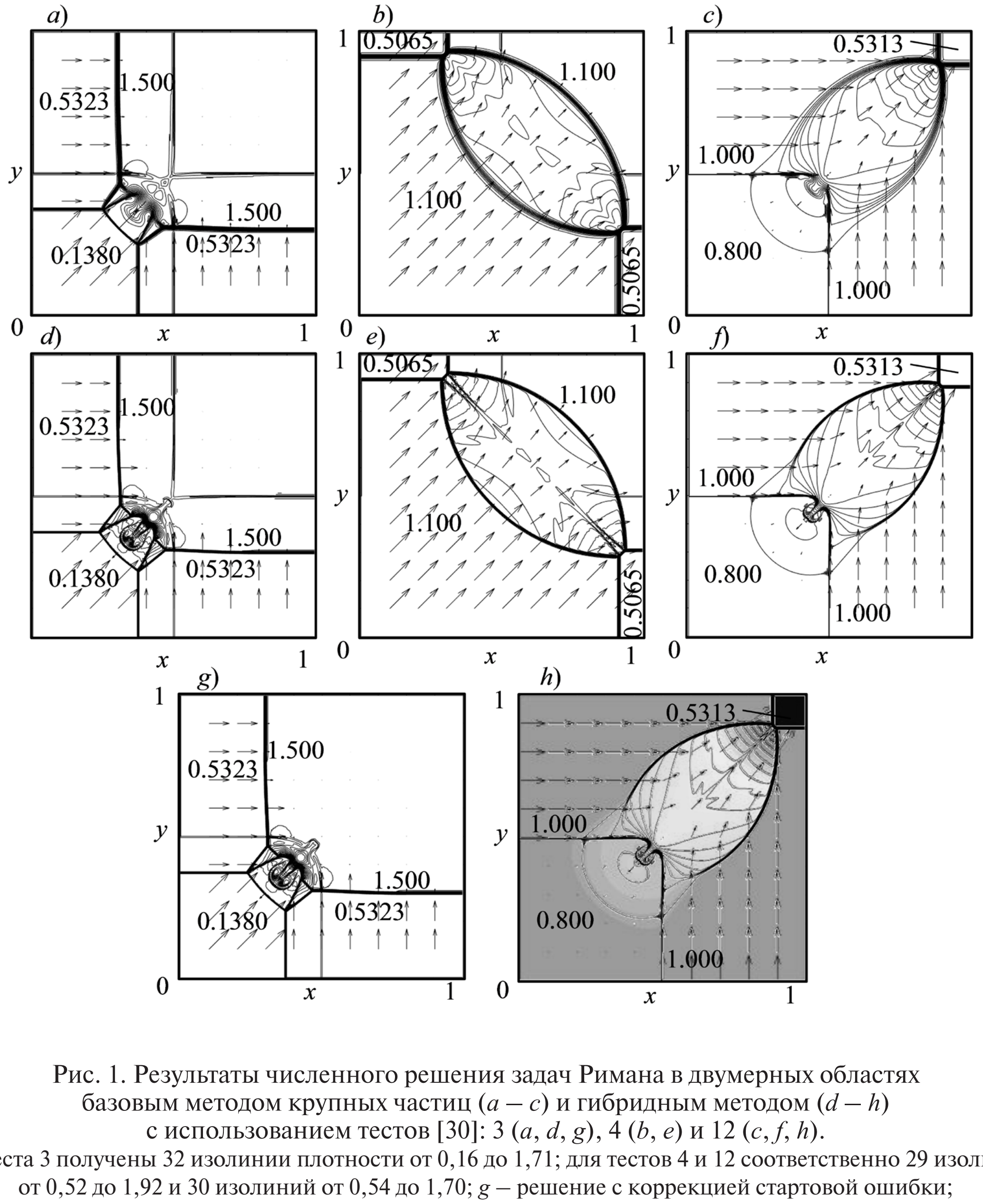


Рис. 1. Результаты численного решения задач Римана в двумерных областях базовым методом крупных частиц (*a* – *c*) и гибридным методом (*d* – *h*) с использованием тестов [30]: 3 (*a*, *d*, *g*), 4 (*b*, *e*) и 12 (*c*, *f*, *h*).
Для теста 3 получены 32 изолинии плотности от 0,16 до 1,71; для тестов 4 и 12 соответственно 29 изолиний от 0,52 до 1,92 и 30 изолиний от 0,54 до 1,70; *g* – решение с коррекцией стартовой ошибки; *h* – решение сопоставлено с WENO5 из работы [30]; векторы скоростей показаны стрелками

задаче 12, присущий в большей или меньшей степени всем рассматриваемым разностным схемам: в месте начального разрыва, в процессе его распада и дальнейшего расчета остается энтропийный след.

Указанная вычислительная проблема проявляется в ряде других проверочных задач и объясняется тем, что стартовая ошибка возникает в течение короткого промежутка времени установления («размазывания») счетного профиля ударной волны и сохраняется в виде энтропийного следа [31]. Этот численный дефект может быть устранен переустановкой газодинамических параметров в спутном потоке за ударной волной через несколько шагов по времени до начальных значений (см. пример расчета на рис. 1, *g*). Обратим внимание также, что в тесте 12, в малой области порядка численного размера неподвижного тангенциального контактного разрыва, наблюдаются колебания плотности.

Гибридный метод крупных частиц (рис. 1, *d* – *f*) демонстрирует значительные улучшения по точности воспроизведения структур течений по отношению к базовому методу [29] (рис. 1, *a* – *c*) и схеме Годунова первого порядка аппроксимации [32]. Алгоритм CDP2 в данных тестах превосходит по разрешающей способности цитируемые метод адаптивной искусственной вязкости второго порядка аппроксимации [16] и схему с кусочно-параболической реконструкцией третьего порядка [18]. Результаты расчетов хорошо согласуются с лучшими схемами, представленными в статье [30].

Например, на рис. 1, *h* проведено прямое сопоставление со схемой WENO5 пятого порядка точности – нижний слой, поверх которого наложен верхний слой с результатами расчета гибридным методом CDP2. Заметим, что изолинии плотности практически совпадают во всем диапазоне их нанесения. Расчеты по схеме CDP2 находятся в хорошем соответствии с бикомпактной схемой с консервативной монотонизацией [15] (результаты данных тестов не опубликованы, но любезно предоставлены нам для сопоставления).

Тесты *A*, *B*, *C* и *D*. Для проверки работоспособности гибридного метода крупных частиц, в частности уровня его диссипативных свойств и возможности выявления неустойчивости на контактной границе, представляют интерес двумерные задачи Римана с центральной симметрией, например известный тест с цилиндрическим разлетом газа в бесконечную невозмущенную среду (Explosion problem) [30] – тест *A*. В дополнение к этому рассмотрим еще три модифицированные задачи: тесты *B*, *C* и *D*. Тестовая задача *B* формулирует разлет в неограниченный неподвижный газ из области повышенного давления квадратного сечения, а тесты *C* и *D* – это описанные выше проблемы в пространстве, ограниченном твердыми стенками.

В силу центральной симметрии, расчеты выполняются в правом верхнем квадранте на равномерной сетке 400 × 400 с ограничителем потоков $\psi_{f,\mathrm{VL}}$ и вязкости $\psi_{v,\mathrm{SB}}$. Для исключения (минимизации) влияния внешних границ в случаях *A* и *B*, расчетная сетка увеличена до размера 500 × 500. Бесконечность моделировалась расширением сетки на 100 ячеек с возрастанием шага ячейки вправо и вверх по закону

$$h'_{n+1} = h'_n + 0{,}1h,$$

при котором возмущения за время расчета не достигали внешних границ.

Краевые условия для тестов *C* и *D* являются стандартными условиями отражения на стенках.

В начальный момент времени в круге (случаи *A* и *C*) и квадрате (случаи *B* и *D*) заданы плотность $\rho_i = 1$ и давление $p_i = 1$, а вне этих областей их значения равны $\rho_0 = 0{,}125$ и $p_0 = 0{,}1$. Принято допущение, что газ во всей области определения неподвижен. Размер расчетной области по координатным осям принят единичным

$$\left(x, y\right) \in \left(0;1{,}5\right) \times \left(0;1{,}5\right),$$

радиус круга и половина длины квадрата равны 4/15.

Для графического представления результатов расчетов в виде численных шлирен-изображений используем нелинейную функцию градиента плотности:

$$s_{i,j} = \exp\left(-k\frac{\left|\nabla\rho_{i,j}\right|}{\max\limits_{\forall i,j}\left|\nabla\rho_{i,j}\right|}\right),$$

где i, j – нумерация ячеек по x и y соответственно; $\nabla\rho_{i,j}$ – градиент плотности; k – настроечный коэффициент для качественного (контрастного) отображения особенностей течения.

На рис. 2 для последовательных моментов безразмерного времени 0,2, 1,1, 1,3 и 3,2 представлены численные шлирен-изображения функции градиента плотности для задач разлета газа в безграничное пространство (верхний ряд – начальная область повышенного давления в виде круга, нижний ряд – в виде квадрата). После распада начального разрыва образуются ударная волна s_1, контактный разрыв c, движущиеся от центра, волна разрежения w (случай A) или две волны w_1 и w_2 (случай B) – к центру. С течением времени формируется вторичный сходящийся к началу координат скачок уплотнения s_2 в форме окружности (рис. 2, b, c) или почти квадратной формы (рис. 2, f, g). На границе раздела газов, обозначенной буквой c, начинает развиваться неустойчивость. После фокусировки скачка уплотнения s_2 возникает отраженная от центра симметрии ударная волна s_3, взаимодействующая с контактной границей c (рис. 2, d, h). Сопоставление численного решения (рис. 2, d) с результатами работы [30] подтверждает малую диссипативность схемы CDP2 в задачах с развитием неустойчивости на контактной границе.

Влияние возмущенной (ступенчатой) начальной границы круга на развитие неустойчивости обсуждается в работах [3, 30]. Как показывают расчеты, даже сглаженный контактный разрыв не является стабильным. В этом смысле интересен тест B, в котором

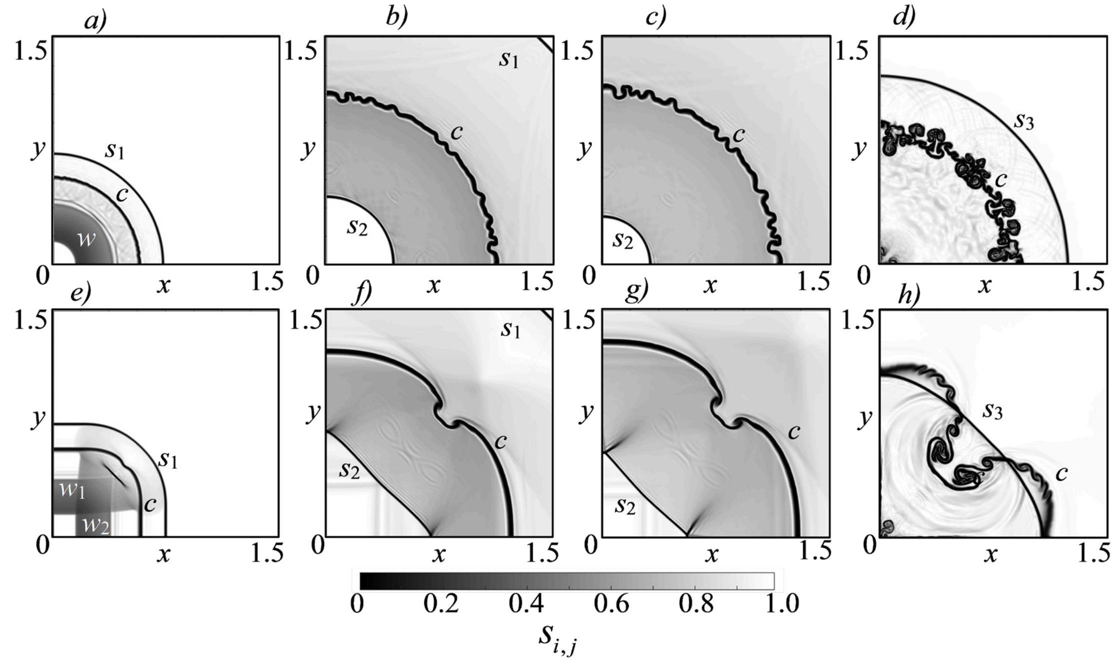


Рис. 2. Численные шлирен-изображения функции градиента плотности в последовательные моменты времени: 0,2 (a, e), 1,1 (b, f), 1,3 (c, g) и 3,2 (d, h). Использованы тесты A (a – d) и B (e – h).
Размер сетки – 400 × 400; c – контактная граница; s_1, s_3 – ударные волны; s_2 – скачок уплотнения, w, w_1, w_2 – волны разрежения

контактная граница (квадрат) в начальный момент времени совпадает с гранями ячеек. В этом случае возмущения начинают развиваться с вершин квадратной области, а затем распространяются по всей границе раздела газов (рис. 2, *h*).

Варианты решения задач в ограниченном пространстве (*C* и *D*) для указанных выше последовательных моментов времени обладают более «богатой» конфигурацией течений газа и приведены на рис. 3. Начало разлета при $t_1 = 0{,}2$ не отличается от рассмотренных случаев (рис. 2, *a*, *e*), поскольку фронт ударной волны s_1 не дошел до стенок. В последующие моменты времени $t_2 = 1{,}1$ и $t_3 = 1{,}3$ формируются структуры, включающие ударные волны: отраженная от стенки s_4, прошедшая s_5 и отраженная от контактной границы s_6, вторично отраженная от стенки s_7, сфокусированная s_8 и образованная после столкновения скачков уплотнения s_9. В дальнейшем, при $t_4 = 3{,}2$ течение газа сопровождается многократными взаимодействиями ударных волн со стенками, между собой и контактной границей и развивается турбулентность.

Для пояснения физического механизма развития неустойчивости и образования вихрей на контактной границе рассмотрим транспортное уравнение для завихренности $\omega = \nabla \times \mathbf{v}$:

$$\frac{d\omega}{dt} = \frac{\nabla\rho \times \nabla p}{\rho^2} + (\omega \cdot \nabla)\,\mathbf{v} - \omega(\nabla \cdot \mathbf{v}),$$

где d/dt – производная вдоль траектории завихренности.

В начальный момент времени $\omega = 0$. Из приведенного уравнения следует, что причиной генерации вихрей является несовпадение градиентов давления и плотности

$$(\nabla\rho \times \nabla p)/\rho^2 \neq 0$$

(бароклинный эффект).

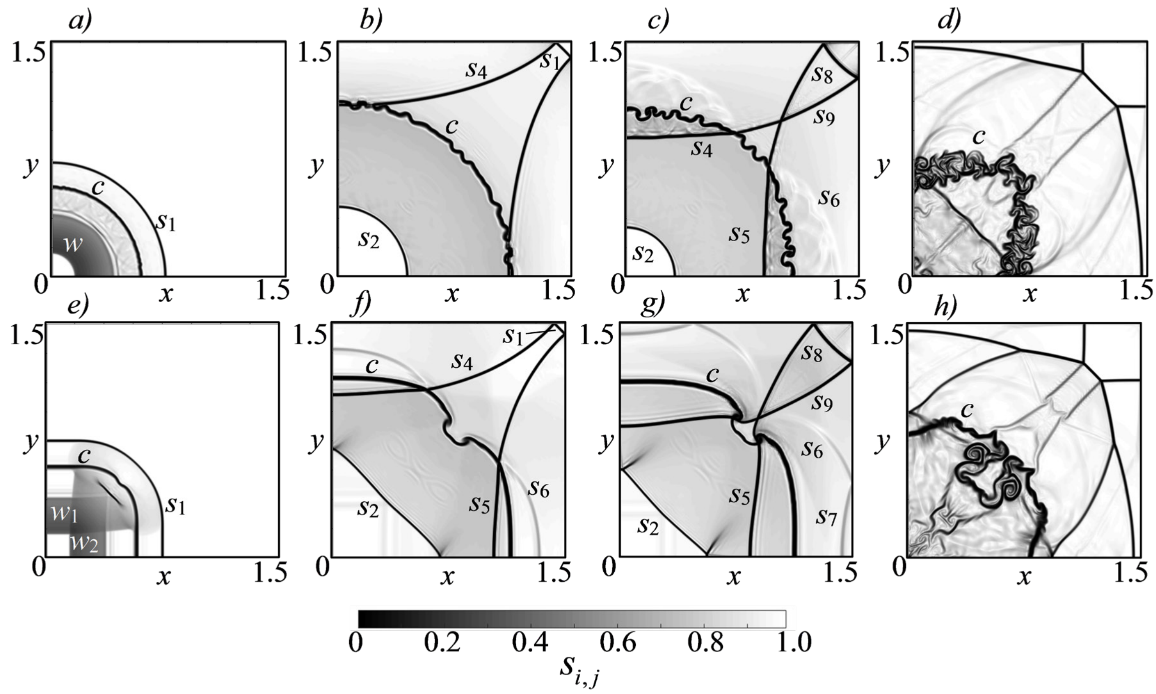


Рис. 3. Численные шлирен-изображения функции градиента плотности в последовательные моменты времени: 0,2 (*a*, *e*), 1,1 (*b*, *f*), 1,3 (*c*, *g*) и 3,2 (*d*, *h*). Использованы тесты *C* (*a* – *d*) и *D* (*e* – *h*).
Размер сетки – 400 × 400; *c* – контактная граница; s_1 – s_9 – ударные волны; w, w_1, w_2 – волны разрежения

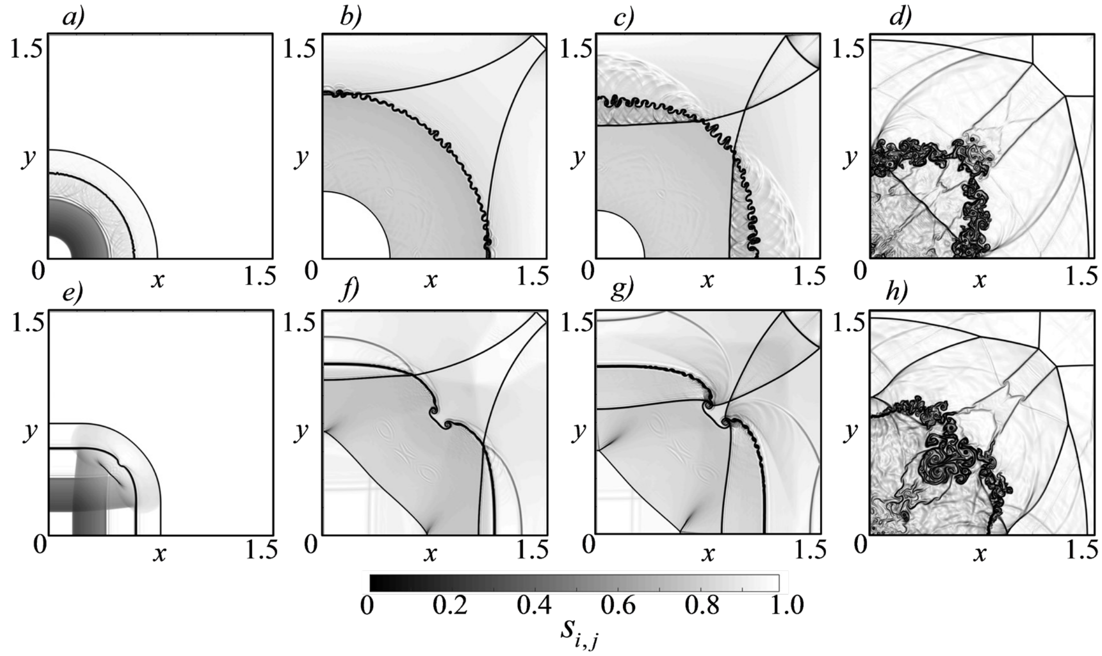


Рис. 4. Численные шлирен-изображения функции градиента плотности в последовательные моменты времени, аналогичные представленным на рис. 3, но полученные при размере сетки 800 × 800

Этот эффект ярко выражен при многократном взаимодействии отраженных от стенок ударных волн с контактной границей, с формированием вторичных вихрей и развитием турбулентности (см. рис. 3, 4, *d* и *h*).

Для проверки сходимости, а также влияния разрешения сетки на формирование вихревых структур выполнен расчет с уменьшением вдвое размеров ячейки. Результаты для случаев *C* и *D* представлены на рис. 4. Наложение численных полей течений (рисунки не приведены), полученных на разных сетках, подтверждает практическое совпадение линий ударных волн и их сопряжения в тройных точках. Вихревые элементы имеют большую детализацию на подробной сетке, а расчеты согласуются между собой вследствие стохастической природы в осредненном смысле.

Заключение

Рассмотрен класс разностных схем с настраиваемыми диссипативными свойствами, с расщеплением по физическим процессам – гибридный метод крупных частиц второго порядка аппроксимации по пространству и времени на гладких решениях. Метод верифицирован на известных задачах Римана в двумерных областях, имеющих надежные численные решения.

Показано значительные улучшение точности воспроизведения структур течения, по сравнению с базовым методом крупных частиц. Продемонстрирована высокая конкурентоспособность предложенного алгоритма при сопоставлении с современными схемами повышенного порядка аппроксимации.

Проведено детальное исследование работоспособности метода на новых тестовых задачах с многократными взаимодействиями ударных волн с контактной границей, стенками канала и развитием неустойчивости.

Гибридный метод крупных частиц подтвердил высокую разрешающую способность как в областях ударно-волновых конфигураций, так и в зонах вихревых структур.

Предложенные тестовые задачи могут быть востребованы для проверки других разностных схем.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Годунов С.К.** Разностный метод численного расчета разрывных решений гидромеханики // Математический сборник. 1959. Т. 47 (89). № 3. С. 271–306.

2. **Колган В.П.** Применение принципа минимальных значений производных к построению конечно-разностных схем для расчета разрывных решений газовой динамики // Ученые записки ЦАГИ. 1972. Т. 3. № 6. С. 68–77.

3. **Toro E.F.** Riemann solvers and numerical methods for fluid dynamics. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2009. 724 p.

4. **Harten A.** High resolution schemes for hyperbolic conservation laws // Journal of Computational Physics. 1983. Vol. 49. No. 3. Pp. 357–393.

5. **Sweby P.K.** High-resolution schemes using flux limiters for hyperbolic conservation laws // SIAM Journal of Numerical Analysis. 1984. Vol. 21. No. 5. Pp. 995–1011.

6. **Hirsch C.** Numerical computation of internal and external flows. Vol. 2. Computational methods for inviscid and viscous flows. New York: John Wiley & Sons, 1990. 691 p.

7. **Jiang G.-S., Shu C.-W.** Efficient implementation of weighted ENO schemes // Journal of Computational Physics. 1996. Vol. 126. No. 1. Pp. 202–228.

8. **Shi J., Zhang Y.-T., Shu C.-W.** Resolution of high order WENO schemes for complicated flow structures // Journal of Computational Physics. 2003. Vol. 186. No. 2. Pp. 690–696.

9. **Евстигнеев Н.М.** О построении и свойствах WENO-схем пятого, седьмого, девятого, одиннадцатого и тринадцатого порядков. Часть 2. Численные примеры // Компьютерные исследования и моделирование. 2016. Т. 8. № 6. 885–910.

10. **Федоренко Р.П.** Применение разностных схем высокой точности для численного решения гиперболических уравнений // Журнал вычислительной математики и математической физики. 1962. Т. 2. № 6. С. 1122–1128.

11. **Liu X., Zhang S., Zhang H., Shu C.-W.** A new class of central compact schemes with spectral-like resolution II: Hybrid weighted nonlinear schemes // Journal of Computational Physics. 2015. Vol. 284. 1 March. Pp. 133–154.

12. **Лобанов А.И., Миров Ф.Х.** Гибридная разностная схема с обобщенным условием аппроксимации. Анализ в пространстве неопределенных коэффициентов // Журнал вычислительной математики и математической физики. 2018. Т. 58. № 8. С. 73–82.

13. **Толстых А.И.** О семействах компактных аппроксимаций 4-го и 5-го порядков с обращением двухточечных операторов для уравнений с конвективными членами // Журнал вычислительной математики и математической физики. 2010. Т. 50. № 5. С. 894–907.

14. **Shen Y.-Q., Zha G.-C.** Generalized finite compact difference scheme for shock/complex flow field interaction // Journal of Computational Physics. 2011. Vol. 230. No. 12. Pp. 4419–4436.

15. **Bragin M.D., Rogov B.V.** Conservative limiting method for high-order bicompact schemes as applied to systems of hyperbolic equations // Applied Numerical Mathematics. 2020. Vol. 151. May. Pp. 229–245.

16. **Попов И.В., Фрязинов И.В.** Расчеты двумерных тестовых задач методом адаптивной искусственной вязкости // Математическое моделирование. 2010. Т. 22. № 5. С. 57–66.

17. **Карабасов С.А.** О возможностях методов второго порядка аппроксимации на примере модельных задач газо- и гидродинамики // Математическое моделирование. 2010. Т. 22. № 7. С. 93–120.

18. **Булат П.В., Волков К.Н.** Решение двумерных задач Римана при помощи метода кусочно-параболической реконструкции // Инженерно-физический журнал. 2017. Т. 90. № 3. С. 558–568.

19. **Колесник Е.В., Смирнов Е.М.** Тестирование различных схем с квазиодномерной реконструкцией газодинамических переменных при расчетах на неструктурированных сетках // Научно-технические ведомости СПБГПУ. Физико-математические науки. 2017. Т. 10. № 3. С. 123–139.

20. **Чижонков Е.В.** О схемах второго порядка точности для моделирования плазменных колебаний // Вычислительные методы и про-

граммирование. 2020. Т. 21. № 1. С. 115–128.

21. **Садин Д.В.** TVD-схема для жестких задач волновой динамики гетерогенных сред негиперболического неконсервативного типа // Журнал вычислительной математики и математической физики. 2016. Т. 56. № 12. С. 2098–2109.

22. **Садин Д.В.** Схемы с настраиваемыми диссипативными свойствами для численного моделирования течений газа и газовзвесей // Математическое моделирование. 2017. Т. 29. № 12. С. 89–104.

23. **Садин Д.В., Давидчук В.А.** Сравнение модифицированного метода крупных частиц с некоторыми схемами высокой разрешающей способности. Одномерные тесты // Вычислительные методы и программирование. 2019. Т. 20. № 2. С. 138–146.

24. **Садин Д.В., Беляев Б.В., Давидчук В.А.** Сравнение модифицированного метода крупных частиц с некоторыми схемами высокой разрешающей способности. Двумерные тесты // Вычислительные методы и программирование. 2019. Т. 20. № 3. С. 337–345.

25. **Садин Д.В.** Анализ диссипативных свойств гибридного метода крупных частиц для структурно сложных течений газа // Компьютерные исследования и моделирование. 2020. Т. 12. № 4. С. 757–772.

26. **Тагирова И.Ю., Родионов А.В.** Применение искусственной вязкости для борьбы с карбункул-неустойчивостью в схемах типа Годунова // Математическое моделирование. 2015. Т. 27. № 10. С. 47–64.

27. **Balsara D.S.** A two-dimensional HLLC Riemann solver for conservation laws: Application to Euler and magnetohydrodynamic flows // Journal of Computational Physics. 2012. Vol. 231. No. 22. Pp. 7476–7503.

28. **Садин Д.В.** Модификация метода крупных частиц до схемы второго порядка точности по пространству и времени для ударно-волновых течений газовзвеси // Вестник Южно-Уральского государственного университета. Сер. Математическое моделирование и программирование. 2019. Т. 12. № 2. С. 112–122.

29. **Белоцерковский О.М., Давыдов Ю.М.** Нестационарный метод «крупных частиц» для газодинамических расчетов // Журнал вычислительной математики и математической физики. 1971. Т. 11. № 1. С. 182–207.

30. **Liska R., Wendroff B.** Comparison of several difference schemes on 1D and 2D test problems for the Euler equations // SIAM Journal on Scientific Computing. 2003. Vol. 25. No. 3. Pp. 995–1017.

31. **Woodward P., Colella P.** The numerical simulation of two-dimensional fluid flow with strong shocks // Journal of Computational Physics. 1984. Vol. 54. No. 1. Pp. 115–173.

32. **Brio M., Zakharian A.R., Webbz G.M.** Two-dimensional Riemann solver for Euler equations of gas dynamics // Journal of Computational Physics. 2001. Vol. 167. No. 1. Pp. 177–195.

Статья поступила в редакцию 28.10.2020, принята к публикации 26.11.2020.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

САДИН Дмитрий Викторович – *доктор технических наук, профессор Военно-космической академии имени А.Ф. Можайского, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

197198, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Ждановская ул., 13

sadin@yandex.ru

ГОЛИКОВ Игорь Олегович – *кандидат технических наук, доцент Военно-космической академии имени А.Ф. Можайского, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

197198, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Ждановская ул., 13

igira55@yandex.ru

ШИРОКОВА Елена Николаевна – *кандидат химических наук, преподаватель Военно-космической академии имени А.Ф. Можайского, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

197198, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Ждановская ул., 13

shirokelen-78@mail.ru

REFERENCES

1. **Godunov S.K.,** A difference method for numerical calculation of discontinuous solutions of the equations of hydrodynamics, Matematicheskii Sbornik. 47 (89) (3) (1959) 271–306 (in Russian).

2. **Kolgan V.P.,** Primeneniye printsipa minimalnykh znacheniy proizvodnykh k postroyeniyu konechno-raznostnykh skhem dlya rascheta razryvnykh resheniy gazovoy dinamiki [An application of the minimal derivative values concept to construction of the finite-difference schemes for calculating the discontinuous solutions of gas dynamics], Uchenyye Zapiski TsAGI. 3 (6) (1972) 68–77 (in Russian).

3. **Toro E.F.,** Riemann solvers and numerical methods for fluid dynamics, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2009.

4. **Harten A.,** High resolution schemes for hyperbolic conservation laws, J. Comput. Phys. 49 (3) (1983) 357–393.

5. **Sweby P.K.,** High-resolution schemes using flux limiters for hyperbolic conservation laws, SIAM J. Numer. Anal. 21 (5) (1984) 995–1011.

6. **Hirsch C.,** Numerical computation of internal and external flows, Vol. 2, Computational methods for inviscid and viscous flows, John Wiley & Sons, New York, 1990.

7. **Jiang G.-S., Shu C.-W.,** Efficient implementation of weighted ENO schemes, J. Comp. Phys. 126 (1) (1996) 202–228.

8. **Shi J., Zhang Y.-T., Shu C.-W.,** Resolution of high order WENO schemes for complicated flow structures, J. Comp. Phys. 186 (2) (2003) 690–696.

9. **Evstigneev N.M.,** On the construction and properties of WENO schemes order five, seven, nine, eleven and thirteen. Part 2. Numerical examples, Computer Research and Modeling. 8 (6) (2016) 885–910 (in Russian).

10. **Fedorenko R.P.,** The application of difference schemes of high accuracy to the numerical solution of hyperbolic equations, USSR Comput. Math. and Math. Phys. 2 (6) (1963) 1355–1365.

11. **Liu X., Zhang S., Zhang H., Shu C.-W.,** A new class of central compact schemes with spectral-like resolution II: Hybrid weighted nonlinear schemes, J. Comp. Phys. 284 (1 March) 133–154.

12. **Lobanov A.I., Mirov F.Kh.,** Hybrid difference scheme under generalized approximation condition in the space of undetermined coefficients, Comput. Math. and Math. Phys. 58 (8) (2018) 1270–1279.

13. **Tolstykh A.I.,** On families of compact fouth- and fifth-order approximations involving the inversion of two-point operators for equations with convective terms, Comput. Math. and Math. Phys. 50 (5) (2010) 848–861.

14. **Shen Y.-Q., Zha G.-C.,** Generalized finite compact difference scheme for shock/complex flow field interaction, J. Comp. Phys. 230 (12) (2011) 4419–4436.

15. **Bragin M.D., Rogov B.V.,** Conservative limiting method for high-order bicompact schemes as applied to systems of hyperbolic equations, Appl. Num. Math. 151 (May) (2020) 229–245.

16. **Popov I.V., Fryazinov I.V.,** Calculations of two-dimensional test problems by the method of adaptive viscosity, Math. Models Comput. Simul. 2 (6) (2010) 724–732.

17. **Karabasov S.A.,** On the power of second-order accurate numerical methods for model problems of gas- and hydrodynamics, Math. Models Comput. Simul. 3 (1) (2011) 92–112.

18. **Bulat P.V., Volkov K.N.,** Solution of two-dimensional Rieman problems using the method of piecewise parabolic reconstruction, J. Eng. Phys. Thermophys. 90 (3) (2017) 525–534.

19. **Kolesnik E.V., Smirnov E.M.,** Testing of various schemes with quasi-one-dimensional reconstruction of gasdynamic variables in the case of unstructured-grid calculations, St. Petersburg Polytechnic University Journal. Physics and Mathematics. 10 (3) (2017) 123–139.

20. **Chizhonkov E.V.,** On second-order accu-

racy schemes for modeling of plasma oscillations, Numerical Methods and Programming. 21 (1) (2020) 115–128 (in Russian).

21. **Sadin D.V.,** TVD scheme for stiff problems of wave dynamics of heterogeneous media of non-hyperbolic nonconservative type, Comput. Math. and Math. Phys. 56 (12) (2016) 2068–2078.

22. **Sadin D.V.,** Schemes with customizable dissipative properties as applied to gas-suspensions flow simulation, Matem. Mod. 29 (12) (2017) 89–104 (in Russian).

23. **Sadin D.V., Davidchuk V.A.,** Comparison of a modified large-particle method with some high resolution schemes. One-dimensional test problems, Numerical Methods and Programming. 20 (2) (2019) 138–146 (in Russian).

24. **Sadin D.V., Belyayev B.V., Davidchuk V.A.,** Comparison of a modified large-particle method with some high resolution schemes. Two-dimensional test problems, Numerical Methods and Programming. 20 (3) (2019) 337–345 (in Russian).

25. **Sadin D.V.,** Analysis of dissipative properties of a hybrid large-particle method for structurally complicated gas flows, Computer Research and Modeling. 12 (4) (2020) 757–772 (in Russian).

26. **Tagirova I.Yu., Rodionov A.V.,** Application of the artificial viscosity for suppressing the carbuncle phenomenon in Godunov-type schemes, Mathematical Models and Computer Simulations. 8 (3) (2016) 249–262.

27. **Balsara D.S.,** A two-dimensional HLLC Riemann solver for conservation laws: Application to Euler and magneto hydrodynamic flows, J. Comput. Phys. 231 (22) (2012) 7476–7503.

28. **Sadin D.V.,** A modification of the large-particle method to a scheme having the second order of accuracy in space and time for shockwave flows in a gas suspension, Bulletin of the South Ural State University. Ser. Mathematical Modelling, Programming & Computer Software (Bulletin SUSU MMCS). 12 (2) (2019) 112–122 (in Russian).

29. **Belotserkovskii O.M., Davydov Yu.M.,** A non-stationary “Coarse particle” method for gas-dynamical computations, URSS Comp. Math. and Math. Phys. 11 (1) (1971) 241–271.

30. **Liska R., Wendroff B.,** Comparison of several difference schemes on 1D and 2D test problems for the Euler equations, SIAM J. Sci. Comp. 25 (3) (2003) 995–1017.

31. **Woodward P., Colella P.,** The numerical simulation of two-dimensional fluid flow with strong shocks, J. Comp. Phys. 54 (1) (1984) 115–173.

32. **Brio M., Zakharian A.R., Webbz G.M.,** Two-dimensional Riemann solver for Euler equations of gas dynamics, J. Comp. Phys. 167 (1) (2001) 177–195.

Received 28.10.2020, accepted 26.11.2020.

THE AUTHORS

SADIN Dmitriy V.
Military Space Academy named after A.F. Mozhaysky
13, Zhdanovskaya St., St. Petersburg, 197198, Russian Federation
sadin@yandex.ru

GOLIKOV Igor O.
Military Space Academy named after A.F. Mozhaysky
13, Zhdanovskaya St., St. Petersburg, 197198, Russian Federation
igira55@yandex.ru

SHIROKOVA Elena N.
Military Space Academy named after A.F. Mozhaysky
13, Zhdanovskaya St., St. Petersburg, 197198, Russian Federation
shirokelen-78@mail.ru

DOI: 10.18721/JPM.14105
УДК 532.542.4

ЧИСЛЕННОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ СТРУКТУРЫ И ЛОКАЛЬНОЙ ТУРБУЛИЗАЦИИ ТЕЧЕНИЯ В КРОВЕНОСНОМ СОСУДЕ С ОДНОСТОРОННИМ СТЕНОЗОМ

Я.А. Гатаулин, Е.М. Смирнов

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Санкт-Петербург, Российская Федерация

В статье представлены результаты расчетов течения в модели кровеносного сосуда с односторонним стенозом 70 % при числе Рейнольдса, равном 1803. Численное решение получено методом моделирования крупных вихрей по динамической модели Джермано – Лилли для оценки подсеточной вязкости. Установлено, что непосредственно за стенозом в потоке выделяются 2 зоны: струйного течения и обширная рециркуляционная, а в каждой присутствует пара вихрей вторичного течения. Неустойчивости слоя смешения на границе струи и зоны обратного течения инициируют турбулизацию потока с образованием разномасштабных вихревых структур. Последние заполняют все поперечное сечение сосуда в окрестности точки присоединения. Турбулентные напряжения значительны по величине лишь на участке длиной около четырех калибров. Вниз по потоку течение реламинаризируется.

Ключевые слова: кровоток, стеноз, турбулентность, численное моделирование, метод моделирования крупных вихрей

Ссылка при цитировании: Гатаулин Я.А., Смирнов Е.М. Численное исследование структуры и локальной турбулизации течения в кровеносном сосуде с односторонним стенозом // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 72–84. DOI: 10.18721/JPM.14105

A FLOW IN THE BLOOD VESSEL WITH A ONE-SIDE STENOSIS: NUMERICAL STUDY OF THE STRUCTURE AND LOCAL TURBULIZATION

Ya.A. Gataulin, E.M. Smirnov

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,
St. Petersburg, Russian Federation

In the paper, the LES results of a flow by using a model of the blood vessel with a one-side 70% stenosis, at a Reynolds number of 1803, have been presented. The Germano – Lilly model was applied to subgrid viscosity evaluation. A jet-like zone and a recirculation one were found to stand out just behind the stenosis, and a pair of secondary-flow vortices forms being within each of them. Instabilities of the mixing layer initiated the flow turbulence with formation of vortex structures of different scales at the boundary between the reverse flow zone and the jet. These structures filled the whole cross-section of the vessel about the flow attachment point. Turbulent shear stresses were significant in magnitude only at a flow section of about four-caliber length. Further downstream, the flow relaminarised.

Keywords: blood flow, stenosis, turbulence, numerical simulation, large eddy simulation

Citation: Gataulin Ya.A., Smirnov E.M., A flow in the blood vessel with a one-side stenosis: numerical study of the structure and local turbulization, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 72–84. DOI: 10.18721/JPM.14105

Введение

Современная вычислительная гидродинамика (Computational Fluid Dynamics, CFD) предоставляет широчайшие возможности для расчета кровотока в различных участках сосудистого русла. В мелких и средних сосудах, где значения числа Рейнольдса Re не превосходят 1000, реализуется ламинарный режим течения. Пространственная структура ламинарного потока в моделях сонной артерии, включающих случай сосуда со стенозом (стойкое сужение его просвета), составляла предмет ряда предыдущих исследований авторов данной работы [1 – 3]. Однако поток за стенозом в крупных кровеносных сосудах характеризуется большими значениями числа Рейнольдса и представляет особую сложность для расчета. Течение за стенозом в таких сосудах фактически оказывается циклически переходным, так как на части сердечного цикла оно является локально турбулентным, в остальное время цикла – полностью ламинарным. Отработка подходов к моделированию локально возникающей турбулентности служит ключом к получению достаточно надежных предсказаний.

Традиционно для расчета турбулентных течений в стенозах используются модели, построенные на основе уравнений Навье – Стокса, осредненных по Рейнольдсу (Reynolds-Averaged Navier – Stokes equations, RANS) [4 – 7]. Было установлено, что RANS-модели способны обеспечивать хорошую согласованность расчетного поля осредненной скорости с данными измерений, однако качество предсказания ряда характеристик турбулентности, также интересных с биомедицинской точки зрения, оказывается очень низким.

В целях повышения качества численного анализа турбулентных течений в сосудах со стенозом, в последние годы все шире применяется прямое численное моделирование (Direct Numerical Simulation, DNS) [8 – 11] и вихреразрешающие модели, к которым относится, прежде всего, метод моделирования крупных вихрей (Large Eddy Simulation, LES) [12 – 15]. В методе DNS все составляющие нестационарного вихревого движения разрешаются полностью, что предопределяет высокие вычислительные затраты на получение численного решения, которые быстро увеличиваются с ростом числа Рейнольдса. В существенно менее затратном методе LES численно воспроизводятся лишь достаточно крупные вихри, для которых характерен энергоперенос, в то время как вихри меньшего масштаба моделируются с помощью подсеточных моделей (SubGrid-Scale models, SGS).

Большинство прикладных расчетов по методу LES проводится с применением классической модели Смагоринского, вводящей подсеточную турбулентную вязкость. Эта модель была разработана в предположении достаточной развитости турбулентности, что для практических приложений сводится к условию существенного превышения значений подсеточной вязкости, по сравнению с молекулярной. Для течений с переходным характером движения (от ламинарного к турбулентному), применение модели Смагоринского с постоянным значением эмпирической постоянной (коэффициента) C_S в формуле для расчета подсеточной вязкости, является неправомерным.

Для расширения возможностей алгебраической модели Смагоринского, в том числе и на случай переходных течений, в работе М. Джермано и др. [16] была развита так называемая динамическая модель, в которой коэффициент C_S не задается, а вычисляется на основе выражения, полученного посредством приложения процедуры двойной фильтрации поля скорости. Несколько позднее Д.К. Лилли [17] предложил важную для практических приложений модификацию динамической модели, которая заключается в обрезании локально возникающих отрицательных значений коэффициента C_S по уровню нулевого значения. В работе [14] динамическую модель Джермано – Лилли успешно применили для LES-расчетов переходных режимов статистически двумерного пульсирующего течения в канале с местным односторонним сужением (модель стеноза) на 50 %; пиковые значения числа Рейнольдса достигали 2000, по третьему направлению накладывались условия периодичности.

В настоящей работе численно исследуется переходное трехмерное течение несжимаемой вязкой жидкости в модели кровеносного сосуда с односторонним стенозом 70 % при постоянном расходе, соответствующем значению числа Рейнольдса Re = 1803.

Геометрия стеноза тождественна одному из вариантов, представленных в недавней экспериментальной работе [18], в которой методом цифровой трассерной визуализации (Particle Image Velocimetry, PIV) исследовалось течение с пульсирующем расходом (при пиковом значении Re = 1803). Расчеты с использованием программного пакета вычислительной гидродинамики ANSYS CFX 18.2 выполнены на основе метода моделирования крупных вихрей с динамической моделью Джермано – Лилли для расчета подсеточной вязкости.

Постановка задачи и вычислительные аспекты

Геометрическая модель сосуда с односторонним стенозом (рис. 1) заимствована из экспериментальной работы [18]. За границами стеноза сосуд представляет собой трубку диаметром D. Введем декартову систему координат x, y, z, начало координат которой расположено в сечении с минимальным проходным отверстием; ось z направлена вдоль сосуда, а ось y – в сторону нестенозированной (условно, верхней) стенки. Геометрия стеноза, симметричного относительно центральной продольной плоскости $x = 0$, описывается следующими формулами:

$$\frac{d(z)}{D} = \left(1 - \frac{S}{200}\right) - \frac{S}{200}\cos\left(\frac{2z\pi}{L}\right),$$

$$-\frac{L}{2} \le z \le \frac{L}{2};$$

$$\frac{c(z)}{D} = 1 - \frac{d(z)}{2D}, \quad -\frac{L}{2} \le z \le \frac{L}{2},$$

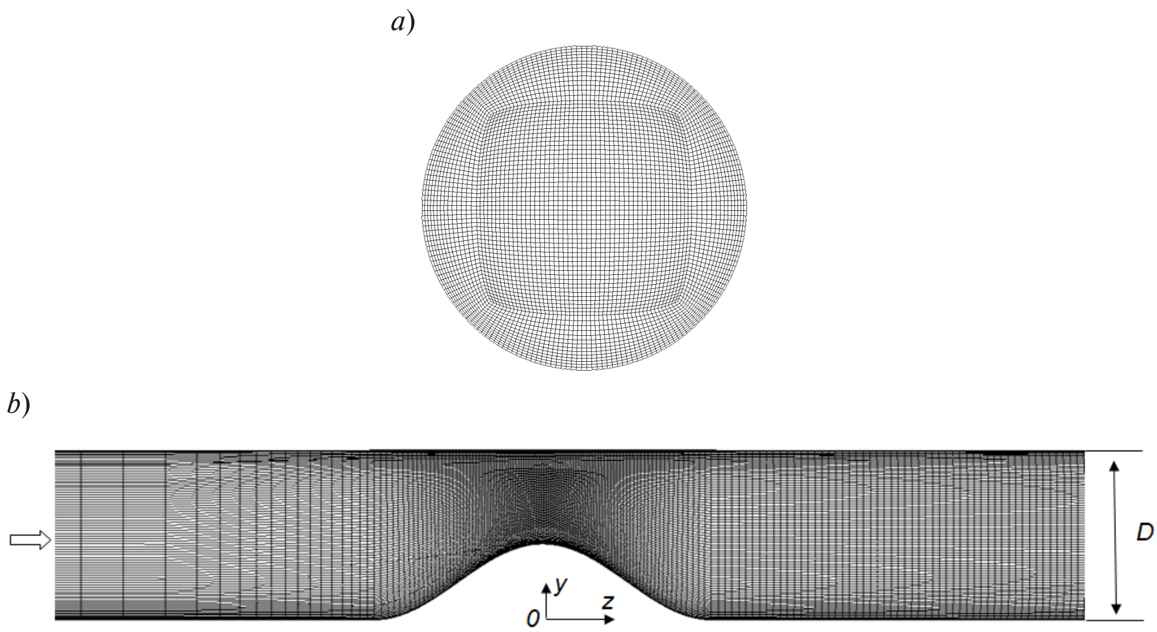


Рис. 1. Вид расчетной сетки в поперечном (*a*) и продольном (*b*) сечениях сосуда со стенозом

где d – локальный диаметр отверстия на участке стеноза, L – протяженнось стеноза, c – координата центра проходного отверстия по оси y при принятом здесь и далее отсчете от нижней стенки,

$$S = (1 - d_{\min}/D)\cdot 100\ \%$$

($d_{\min}$ – минимальный локальный диаметр d).

В рассматриваемом случае $S = 45\ \%$, $L = 2D$, при этом площадь минимального проходного сечения на стенозированном участке составляет 30,25 % от площади поперечного сечения трубки за пределами стеноза, т. е. рассматривается случай стеноза 69,75 % (округленно, 70 %).

Течение в данной модели кровеносного сосуда при Re = 1803 рассчитывалось по методу моделирования крупных вихрей с применением динамической модели Джермано – Лилли [16, 17]. Расчетная область включала участок стеноза, входной участок протяженностью $5D$ и выходной участок протяженностью $20D$; последний достаточен для того чтобы выходное граничное условие не оказывало сколько-нибудь существенного влияния на течение вблизи стеноза.

Расчеты выполнялись по гидродинамическому «конечно-объемному» коду общего назначения ANSYS CFX, версия 18.2. Данное программное средство оперирует размерными величинами.

Набор определяющих размерных параметров задачи представлен в таблице. Число Рейнольдса рассчитано по данным параметрам.

На входе в расчетную область задавалось параболическое распределение скорости, отвечающее решению Пуазейля для развитого ламинарного течения в круглой трубе, на выходе – постоянное давление и «мягкие» условия для скорости. На стенках ставилось условие прилипания.

С использованием программы ICEM CFD была построена блочная расчетная гексаэдрическая сетка типа *O-grid* (см. рис. 1). На участке со стенозом и на всем выходном участке продольный шаг сетки был равномерным и составлял $0{,}04D$, при этом максимальный поперечный шаг составлял $0{,}02D$. На входном участке продольный шаг сетки плавно уменьшался до $0{,}04D$ при подходе к участку со стенозом. Общее число элементов сетки составляло около 4,5 млн.

При вычислениях для аппроксимации конвективных слагаемых уравнений движения использовалась центральная схема второго порядка точности. Для продвижения по физическому времени применялась трехслойная схема Эйлера. Шаг по времени составлял 0,0002 с, что обеспечивало локальные значения числа Куранта меньше единицы во всей расчетной области.

Выборка, использованная для получения осредненных характеристик потока, накапливалась на протяжении времени $1050t_s$, где t_s – временной масштаб задачи ($t_s = D/V_b$); предшествуюший временной интервал, ох-

Таблица

Расчетные параметры и их значения

Параметр	Обозначение	Единица измерения	Значение
Диаметр сосуда (вне стеноза)	D	мм	10
Среднерасходная скорость (вне стеноза)	V_b	м/с	0,627
Плотность жидкости	ρ	кг/м^3	1000
Динамический коэффициент вязкости	μ	Па·с	0,003478
Число Рейнольдса	$\mathrm{Re} = \rho V_b D/\mu$		1803

ватывающий около $600t_s$, был достаточен для выхода на статистически установившийся режим течения, при старте с нулевого поля скорости.

Расчеты проводились на кластере «Политехник – РСК Торнадо» суперкомпьютерного центра «Политехнический» (http://www.scc.spbstu.ru). Задача считалась на 18 двухпроцессорных узлах (Intel(R) Xeon(R) E5 2697v3) и распараллеливалась на 450 ядер, при этом для полного расчета требовалось около недели реального времени (76 000 ядрочасов).

Результаты и их обсуждение

Особенность моделируемого течения заключается в наличии ламинарно-турбулентного перехода в области за стенозом. Чтобы проиллюстрировать эту особенность, на рис. 2,*a* построена изоповерхность Q-критерия [19], которая раскрашена по локальным значениям модуля скорости; тем самым визуализируется область существования разномасштабных турбулентных вихревых структур, которые возникают в результате проявления гидродинамических неустойчивостей. Последние присущи формирующемуся сдвиговому течению струйного характера.

На рис. 2 представлены также две изоповерхности продольной составляющей скорости, осредненной по времени. Первая из них (см. рис. 2,*b*), построенная для значения $V_z = 3{,}2V_b = 2$ м/с, дает представление о размерах области с выраженным струйным характером течения, а вторая (рис. 2,*c*), отвечающая значению $V_z = -0{,}002V_b$, показывает наличие за стенозом двух зон рециркуляционного течения: весьма обширной (ее протяженность составляет около $5D$) зоны, возникающей непосредственно за стенозом, и очень небольшой, расположенной у противоположной стенки на расстоянии около $4D$ от центра стеноза. Перед стенозом также формируется небольшая отрывная зона.

Поля осредненных по времени составляющих скорости в трех поперечных сечениях модели сосуда приведены на рис. 3. Видно, что сформировавшаяся в области стеноза струя с относительно высокими локальными скоростями, до четырех раз превышающими среднерасходную скорость $V_b = 0{,}627$ м/с за пределами стеноза, характеризуется также наличием существенного по интенсивности поперечного (вторичного) течения в виде парного вихря (см. рис. 3,*a*). Фактически, эта пара вихрей, аналогичных вихрям Дина в криволинейных трубах, образуется в передней части стеноза, где течение происходит по криволинейным линиям тока, соответ-

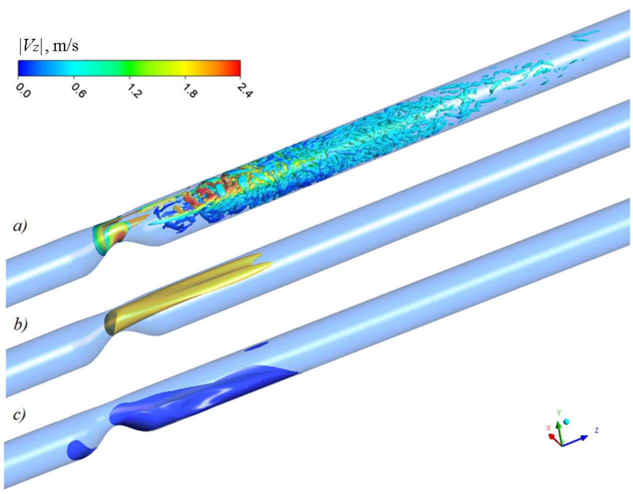


Рис. 2. Структуры течения в сосуде со стенозом, визуализированные через построения изоповерхности Q-критерия ($Q = 0{,}06$ с$^{-2}$) (*a*) и двух изоповерхностей осредненной продольной скорости V_z со значениями $3{,}2V_b$ (*b*) и $-0{,}002V_b$ (*c*)

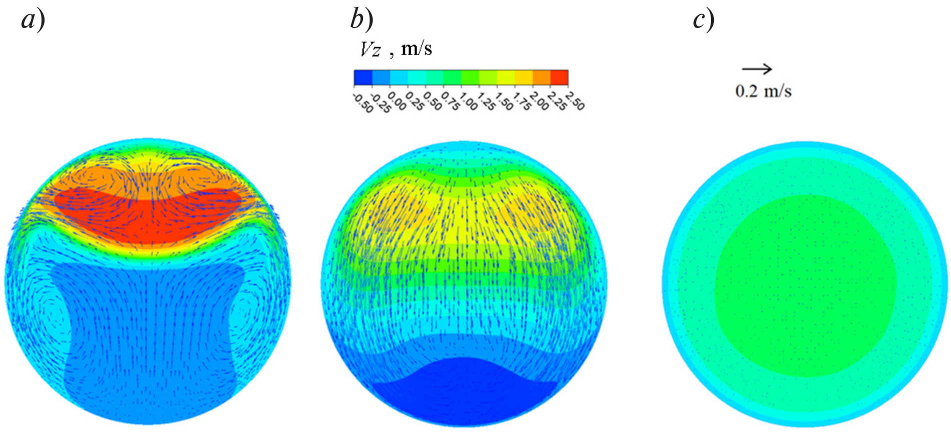


Рис. 3. Осредненное по времени поле продольной составляющей скорости с наложенным на него полем векторов поперечной скорости в трех сечениях модели сосуда: $z/D = 2$ (*a*), 4 (*b*), 10 (*c*)

ственно геометрии стеноза. Парный вихрь, возникший в стенозе, индуцирует, в свою очередь, вторичное течение (противоположной циркуляции) в зоне обратного течения за стенозом, а также приводит к раздвоению струи вниз по потоку (см. рис. 2,*b* и 3,*b*). На расстоянии менее $10D$ от центра стеноза осредненное поперечное течение практически полностью вырождается и распределение осредненной продольной скорости вновь приобретает осесимметричный «трубный» вид, с максимумом скорости в центре сосуда (см. рис. 3,*c*).

Поле осредненной продольной скорости в центральном продольном сечении (в плоскости симметрии) приведено на рис. 4,*a*. Здесь, а также на рис. 3,*b*, видно, что максимальная скорость обратного сечения в основной рециркуляционной зоне сопоставима по величине со среднерасходной скоростью V_b за пределами стеноза.

На границе струи и рециркуляционной зоны формируется высокоградиентный сдвиговый слой (слой смешения), с присущими ему явлениями, обусловленными неустойчивостью Кельвина – Гельмгольца. Визуализация мгновенного поля x-компоненты вектора завихренности (рис. 4,*b*), показывает, что неустойчивость Кельвина – Гельмгольца и другие гидродинамические неустойчивости, которые проявляются в условиях наличия обратного течения и вторичных токов, приводят к турбулизации течения, с образованием разномасштабных трехмерных вихревых структур. В окрестности точки присоединения эти структуры заполняют все поперечное сечение сосуда. Однако далее, вниз по потоку, течение реламинаризируется. Как можно видеть на рис. 2,*a* и 4,*b*, по мере удаления от стеноза в спектре пульсационного движения быстро исчезают мелкомасштабные структуры, а оставшиеся вихревые структуры меньшей интенсивности вытягиваются вдоль потока.

На рис. 4,*c* приведено поле значений одной из компонент тензора напряжений Рейнольдса, рассчитанного по численно разрешаемым составляющим пульсационного движения (помечены штрихом; черта сверху обозначает осреднение по времени). Видно, что сдвиговое турбулентное напряжение $R_{yz} = -\overline{V_y' V_z'}$, оказывающее определяющее влияние на отбор кинетической энергии из основного потока, значительно по величине лишь на нескольких калибрах в окрестности точки присоединения, а именно при $2{,}5 < z/D < 6{,}5$. Это находится в согласии с данными измерений, приведенными в [18] для скорости генерации кинетической энергии турбулентности в момент наибольшего расхода.

Представление об уровне подсеточной кинематической вязкости, предсказываемом в настоящих расчетах динамической моделью

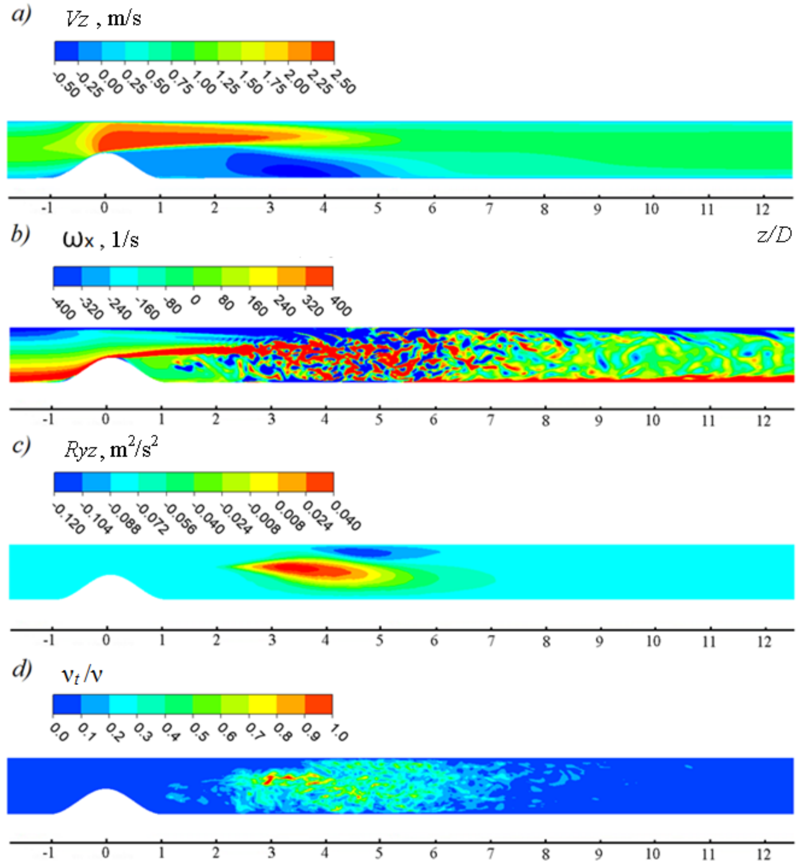
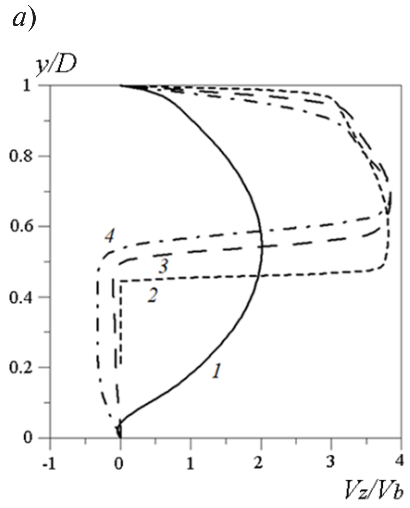


Рис. 4. Расчетные поля в плоскости симметрии сосуда: осредненная по времени продольная скорость (*a*), мгновенное значение *x*-компоненты завихренности (*b*), сдвиговое напряжение Рейнольдса $R_{yz} = -\overline{V_y' V_z'}$ (*c*), мгновенное значение отношения подсеточной вихревой вязкости к молекулярной (*d*)

Джермано – Лилли, дает мгновенное поле отношения подсеточной вихревой вязкости к молекулярной, приведенное на рис. 4,*d*. Из этих данных можно заключить, что в рассматриваемой конфигурации течения, с числом Re = 1803, вклад подсеточной вязкости в диссипативные эффекты опять-таки существен лишь в области, охватывающей несколько калибров в окрестности точки присоединения, да и там отношение ν_t/ν не превышает единицы.

На рис. 5 для нескольких поперечных сечений потока в области стеноза (для наглядности представлено два графика) показаны профили осредненной по времени продольной составляющей скорости в плоскости симметрии, нормированной на значение среднерасходной скорости V_b. Сильное ускорение течения в первой половине области стеноза приводит к тому, что в центре стеноза формируются ядро потока, близкое к однородному, и сдвиговые слои на границах ядра, относительно тонкие, высокоградиентные (см. рис. 5,*a*). На расстоянии двух калибров от центра стеноза (z/D = 2), верхняя часть ядра потока уже в значительной степени размыта; в определяющей мере это обусловлено конвективным переносом низкоскоростной жидкости от стенки, который осуществляет упомянутое выше вторичное течение в виде парного вихря (см. рис. 3,*a*). Вместе с тем, высокоградинентный слой на нижней границе отчетливо выражен вплоть до этого сечения. В сечениях z/D = 4 и 5, расположенных ниже по потоку (рис. 6,*b*), характер профилей скорости существенно иной: их центральная



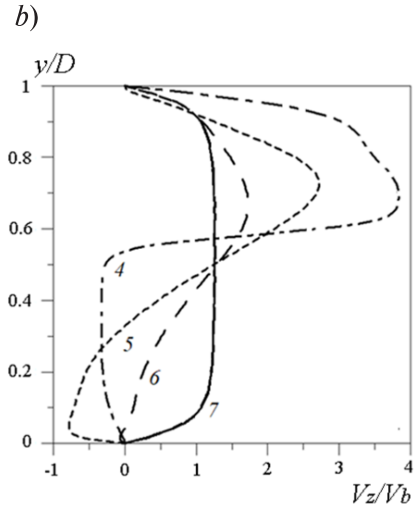


Рис. 5. Профили осредненной по времени продольной скорости в плоскости симметрии, в разных сечениях стенозированного сосуда; *a*): $z/D = -1$ (*1*), 0 (*2*), 1 (*3*), 2 (*4*); *b*): $z/D = 2$ (*4*), 4 (*5*), 5 (*6*), 10 (*7*)

часть характеризуется весьма умеренными градиентами скорости (см. рис. 5,*b*). Профиль скорости, относящийся к сечению $z/D = 10$, хорошо иллюстрирует последствия перемешивающего действия турбулентных структур, «живущих» в окрестности и на некотором расстоянии от точки присоединения: в результате этого перемешивания формируется центральная, практически осесимметричная область течения (см. также рис. 3,*c*), со скоростями, близкими к среднерасходной, и пограничный слой (постепенно нарастающий по толщине по мере удаления от данного сечения).

Продольные распределения осредненного по времени коэффициента трения на нижней и верхней стенках сосуда (в плоскости симметрии) показаны на рис. 6. Коэффициент трения вычислялся по формуле

$$C_f = \tau_w \Big/ \left(\rho V_b^2 / 2\right),$$

где τ_w – модуль вектора напряжения трения на стенке.

С целью выявления участков обратного течения, значения коэффициента трения, приведенные на графиках, рассчитаны с учетом знака продольной составляющей τ_{wz} вектора поверхностного напряжения.

В области стеноза коэффициент трения весьма высок и почти в 50 раз превышает значение 0,00887, которое получено для течения перед этой областью. Максимальные по модулю значения C_f в области возвратного течения в 7 раз выше, чем таковое до области стеноза. Согласно проведенным расчетам, точка присоединения потока в плоскости симметрии находится на расстоянии $L_r = 5{,}3D$ от центра стеноза. Это значение довольно близко к экспериментальной оценке $L_r \cong 4{,}5D$, которая следует из данных статьи [18]. Указанные данные получены для положения точки присоединения в моменты пульсирующего расхода, для которых значения числа Рейнольдса лежат в интервале 1000 – 1800.

Для четырех сечений, расположенных в области за стенозом, на рис. 7 приводятся профили двух характеристик турбулентности: кинетической энергии турбулентности k и напряжения Рейнольдса R_{yz}; обе рассчитаны (для плоскости симметрии) по численно разрешаемым составляющим пульсационного движения и нормированы на квадрат среднерасходной скорости. Примечательно, что в сечениях $z/D = 4$ и 5 кинетическая энергия турбулентности по порядку величины близка к удельной кинетической энергии потока,

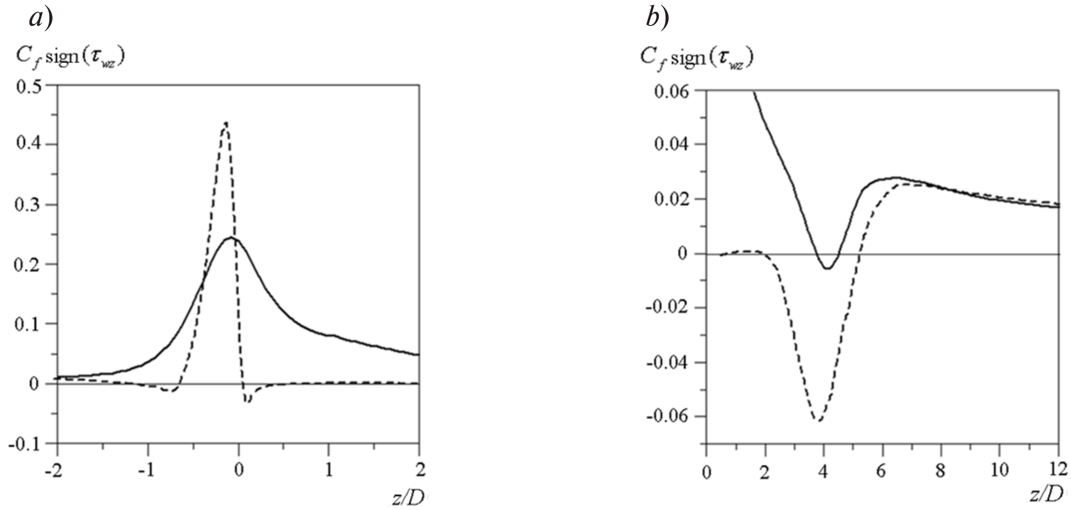


Рис. 6. Продольные изменения коэффициента трения, осредненного по времени, в области стеноза (*a*) и за ней (*b*); приведены данные для верхней (сплошная линия) и нижней (штриховая) стенок

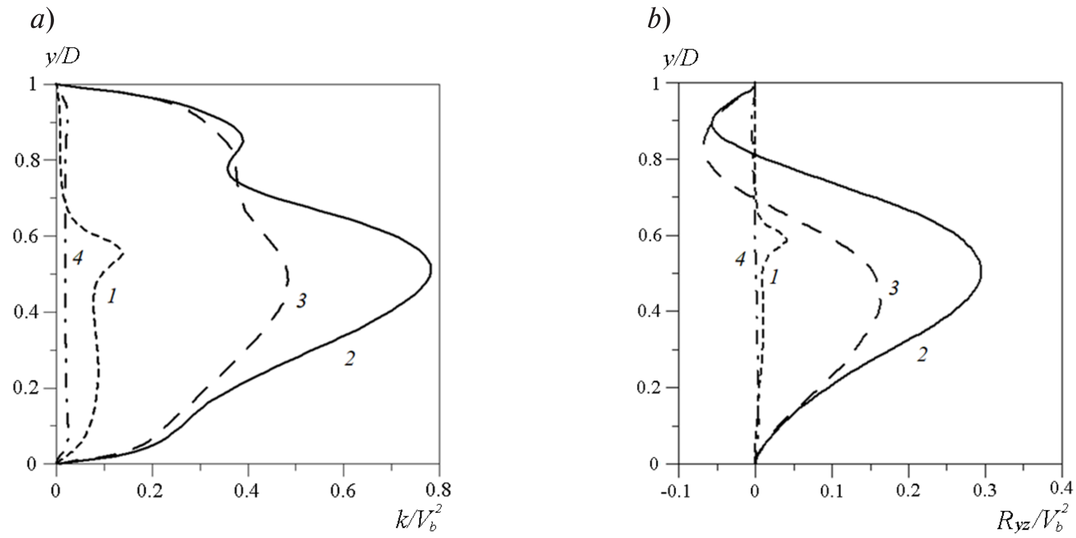


Рис. 7. Нормированные профили кинетической энергии турбулентности k (*a*) и напряжения Рейнольдса R_{yz} (*b*) в плоскости симметрии сосуда для четырех сечений, расположенных в области за стенозом: z/D = 2 (*1*), 4 (*2*), 5 (*3*), 10 (*4*)

входящего в область стеноза. Для каждого из этих сечений местоположения пиковых значений напряжения Рейнольдса и кинетической энергия турбулентности практически совпадают, при этом отношения $R_{yz,peak}/k_{peak}$ составляют примерно 0,38 и 0,35 для сечений $z/D = 4$ и 5 соответственно.

Представляет также интерес сопоставить для этих сечений величину численно разрешаемых R_{yz} и моделируемых (подсеточных) турбулентных напряжений τ_{SGS}. Оценку последних можно провести посредством умножения характерной подсеточной вязкости на максимальную величину градиента скорости, оцениваемую по профилям, приведенным на рис. 5. Согласно данным на рис. 4,*d*, за характерное значение подсеточной вязкости можно принять величину молекулярной вязкости. Как следствие, оценочная величина $\tau_{SGS}/V_b^2 \cong 0{,}005$, что составляет лишь 2 – 3 % от уровня численно разрешаемых турбулентных напряжений.

По мере удаления от сечений $z/D = 4$ и 5 величины k и R_{yz} быстро убывают. Для сечения $z/D = 2$ профили обеих величин имеют локальные максимумы, расположенные при значении $y/D \cong 0{,}6$, т. е. там, где, с одной стороны, профиль средней скорости характеризуется большими градиентами (см. рис. 5) и, с другой стороны, уже заметно проявление гидродинамических неустойчивостей (см. рис. 4,*b*).

Заключение

По методу моделирования крупных вихрей с динамической моделью подсеточной вязкости Джермано – Лилли численно исследовано существенно трехмерное течение, развивающееся при значении числа Рейнольдса Re = 1803 в кровеносном сосуде с односторонним стенозом 70 %. Проведенные расчеты выявили следующие особенности течения.

Осредненное движение в области за стенозом характеризуется наличием двух зон рециркуляционного течения: обширной, развивающейся непосредственно за стенозом, и небольшой, расположенной у противоположной стенки сосуда.

При формировании в области стеноза струи с относительно высокими локальными скоростями развивается также существенное по интенсивности вторичное течение в виде пары вихрей, аналогичных вихрям Дина в криволинейных трубках. Возникший в стенозе парный вихрь индуцирует, в свою очередь, вторичное течение в зоне обратного течения за областью стеноза и приводит также к раздвоению струи.

Поперечное течение практически полностью вырождается на расстоянии менее десяти калибров (диаметров сосуда) от стеноза. На границе струи и зоны обратного течения формируется высокоградиентный слой смешения. Гидродинамические неустойчивости, присущие этому слою, инициализируют турбулизацию течения, с образованием разномасштабных трехмерных вихревых структур, которые заполняют все поперечное сечение сосуда в окрестности точки присоединения, расположенной на расстоянии примерно пяти калибров от центра стеноза.

Сдвиговые турбулентные напряжения значительны по величине лишь на участке протяженностью около четырех калибров в окрестности точки присоединения. Вниз по потоку течение реламинаризируется.

Последовательное применение метода моделирования крупных вихрей, несомненно, должно повысить качество предсказания характеристик турбулентности, развивающейся при протекании крови по стенозированным участкам сосудистого русла, и, как следствие, получать более достоверные данные, представляющие интерес для биомедицины.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (РНФ), грант №20-65-47018.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Гатаулин Я.А., Зайцев Д.К., Смирнов Е.М., Федорова Е.А., Юхнев А.Д.** Расчетно-экспериментальное исследование слабо закрученного течения в модели сосуда со стенозом // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2015. № 4 (230). С. 36–47.

2. **Гатаулин Я.А., Зайцев Д.К., Смирнов Е.М., Юхнев А.Д.** Численное исследование пространственно-временной эволюции вторичного течения в модели общей сонной артерии // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2016. № 4 (253). С. 48–55.

3. **Гатаулин Я.А., Зайцев Д.К., Смирнов Е.М., Юхнев А.Д.** Структура нестационарного течения в пространственно-извитой модели общей сонной артерии со стенозом: численное иссле-

дование // Российский журнал биомеханики. 2019. Т. 23. № 1. С. 69–78.

4. **Ghalichi F., Farzan G., Deng X., Champlain A.D., Douville Y., King M., Guidoin R.** Low Reynolds number turbulence modeling of blood flow in arterial stenoses // Biorheology. 1998. Vol. 35. No. 4, 5. Pp. 281–294.

5. **Varghese S.S., Frankel S.H.** Numerical modeling of pulsatile turbulent flow in stenotic vessels // Journal of Biomechanical Engineering. 2003. Vol. 125. No. 4. Pp. 445–460.

6. **Lee T.S., Liao W., Low H.T.** Numerical study of physiological turbulent flows through series arterial stenoses // International Journal for Numerical Methods in Fluids. 2004. Vol. 46. No. 3. Pp. 315–344.

7. **Li M.X, Beech-Brandt J.J., John L.R., Hoskins P.R., Easson W.J.** Numerical analysis of pulsatile blood flow and vessel wall mechanics in different degrees of stenoses // Journal of Biomechanics. 2007. Vol. 40. No. 16. Pp. 3715–3724.

8. **Sherwin S.J., Blackburn H.M.** Three-dimensional instabilities and transition of steady and pulsatile flows in an axisymmetric stenotic flows // Journal of Fluid Mechanics. 2005. Vol. 533. 25 June. Pp. 297–327.

9. **Blackburn H.M., Sherwin S.J.** Instability modes and transition of pulsatile stenotic flow: pulse-period dependence // Journal of Fluid Mechanics. 2007. Vol. 573. February. Pp. 57–88.

10. **Varghese S.S., Frankel S.H., Fischer P.F.** Direct numerical simulation of stenotic flows. Part 1. Steady flow // Journal of Fluid Mechanics. 2007. Vol. 582. 10 July. Pp. 253–280.

11. **Varghese S.S., Frankel S.H., Fischer P.F.** Direct numerical simulation of stenotic flows. Part 2. Pulsatile flow // Journal of Fluid Mechanics. 2007. Vol. 582. 10 July. Pp. 281–318.

12. **Mittal R., Simmons S.P., Udaykumar H.S.** Application of large-eddy simulation to the study of pulsatile flow in a modelled arteria stenosis // Journal of Biomechanical Engineering. 2001. Vol. 123. No. 4. Pp. 325–332.

13. **Mittal R., Simmons S.P., Najjar F.** Numerical study of pulsatile flow in a constricted channel // Journal of Fluid Mechanics. 2003. Vol. 485. 25 May. Pp. 337–378.

14. **Molla M.M., Paul M.C., Roditi G.** LES of additive and non-additive pulsatile flows in a model arterial stenosis // Computer Methods in Biomechanics and Biomedical Engineering. 2010. Vol. 13. No. 1. Pp. 105–120.

15. **Paul M.C., Molla M.M.** Investigation of physiological pulsatile flow in a model arterial stenosis using large-eddy and direct numerical simulations // Applied Mathematical Modelling. 2012. Vol. 36. No. 9. Pp. 4393–4413.

16. **Germano M., Piomelli U., Moin P., Cabot W.H.** A dynamic subgridscale eddy viscosity model // Physics of Fluids. 1991. Vol. 3. No. 7. Pp. 1760–1765.

17. **Lilly D.K.** A proposed modification of the Germano subgrid-scale closure method // Physics of Fluids. 1992. Vol. 4. No. 3. Pp. 633–635.

18. **Choi W., Park J.H., Byeon H., Lee S.J.** Flow characteristics around a deformable stenosis under pulsatile flow condition // Physics of Fluids. 2018. Vol. 30. No. 1. P. 011902.

19. **Jeong J., Hussain F.** On the identification of a vortex // Journal of Fluid Mechanics. 1995. Vol. 285. 25 February. Pp. 69–94.

Статья поступила в редакцию 29.12.2020, принята к публикации 10.02.2021.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

ГАТАУЛИН Яков Александрович – *математик, заместитель директора Института прикладной математики и механики по научно-исследовательской работе студентов Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

yakov_gataulin@mail.ru

СМИРНОВ Евгений Михайлович – *доктор физико-математических наук, профессор Высшей школы прикладной математики и вычислительной физики Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

smirnov_em@spbstu.ru

REFERENCES

1. **Gataulin Ya.A., Zaitsev D.K., Smirnov E.M., et al.,** Weakly swirling flow in a model of blood vessel with stenosis: Numerical and experimental study, St. Petersburg State Polytechnical University Journal. Physics and Mathematics. (4(230)) (2015) 36–47.

2. **Gataulin Ya.A., Zaitsev D.K., Smirnov E.M., Yukhnev A.D.,** Numerical study of spatial-temporal evolution of the secondary flow in the models of a common carotid artery, St. Petersburg State Polytechnical University Journal. Physics and Mathematics. (4(253)) (2016) 48–55.

3. **Gataulin Y.A., Zaitsev D.K., Smirnov E.M., Yukhnev A.D.,** Structure of unsteady flow in the spatially curved model of the common carotid artery with stenosis: A numerical study, Russian Journal of Biomechanics. 23 (1) (2019) 58–66.

4. **Ghalichi F., Farzan G., Deng X., et al.,** Low Reynolds number turbulence modeling of blood flow in arterial stenosis, Biorheology. 35 (4, 5) (1998) 281–294.

5. **Varghese S.S., Frankel S.H.,** Numerical modeling of pulsatile turbulent flow in stenotic vessels, Journal of Biomechanical Engineering. 125 (4) (2003) 445–460.

6. **Lee T.S., Liao W., Low H.T.,** Numerical study of physiological turbulent flows through series arterial stenosis, International Journal for Numerical Methods in Fluids. 46 (3) (2004) 315–344.

7. **Li M.X, Beech-Brandt J.J., John L.R., et al.,** Numerical analysis of pulsatile blood flow and vessel wall mechanics in different degrees of stenosis, Journal of Biomechanics. 40 (16) (2007) 3715–3724.

8. **Sherwin S.J., Blackburn H.M.,** Three-dimensional instabilities and transition of steady and pulsatile flows in an axisymmetric stenotic flows, Journal of Fluid Mechanics. 533 (25 June) (2005) 297–327.

9. **Blackburn H.M., Sherwin S.J.,** Instability modes and transition of pulsatile stenotic flow: pulse-period dependence, Journal of Fluid Mechanics. 573 (February) (2007) 57–88.

10. **Varghese S.S., Frankel S.H., Fischer P.F.,** Direct numerical simulation of stenotic flows. Part 1. Steady flow, Journal of Fluid Mechanics. 582 (10 July) (2007) 253–280.

11. **Varghese S.S., Frankel S.H., Fischer P.F.,** Direct numerical simulation of stenotic flows. Part 2. Pulsatile flow, Journal of Fluid Mechanics. 582 (10 July) (2007) 281–318.

12. **Mittal R., Simmons S.P., Udaykumar H.S.,** Application of large-eddy simulation to the study of pulsatile flow in a modelled arteria stenosis, Journal of Biomechanical Engineering. 123 (4) (2001) 325–332.

13. **Mittal R., Simmons S.P., Najjar F.,** Numerical study of pulsatile flow in a constricted channel, Journal of Fluid Mechanics. 485 (25 May) (2003) 337–378.

14. **Molla M.M., Paul M.C., Roditi G.,** LES of additive and non-additive pulsatile flows in a model arterial stenosis, Computer Methods in Biomechanics and Biomedical Engineering. 13 (1) (2010) 105–120.

15. **Paul M.C., Molla M.M.,** Investigation of physiological pulsatile flow in a model arterial stenosis using large-eddy and direct numerical simulations // Applied Mathematical Modelling. 36 (9) (2012) 4393–4413.

16. **Germano M., Piomelli U., Moin P., Cabot W.H.,** A dynamic subgridscale eddy viscosity model, Physics of Fluids. 3 (7) (1991) 1760–1765.

17. **Lilly D.K.,** A proposed modification of the Germano subgrid-scale closure method, Physics of Fluids. 4 (3) (1992) 633–635.

18. **Choi W., Park J.H., Byeon H., Lee S.J.,** Flow characteristics around a deformable stenosis under pulsatile flow condition, Physics of Fluids. 30 (1) (2018) 011902.

19. **Jeong J., Hussain F.,** On the identification of a vortex, Journal of Fluid Mechanics. 285 (25 February) (1995) 69–94.

Received 29.12.2020, accepted 10.02.2021.

THE AUTHORS

GATAULIN Yakov A.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
yakov_gataulin@mail.ru

SMIRNOV Evgeny M.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
smirnov_em@spbstu.ru

DOI: 10.18721/JPM.14106
УДК 53.093, 53.096, 57.031, 57.033, 57.038

СТРУКТУРИРОВАННЫЕ БИОМОЛЕКУЛЯРНЫЕ ПЛЕНКИ ДЛЯ МИКРОЭЛЕКТРОНИКИ

М.А. Баранов, О.Ю. Цыбин, Е.Н. Величко

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Санкт-Петербург, Российская Федерация

С целью разработки технологии дегидратации биомолекулярных пленок с заданными параметрами в электростатическом поле (ЭП), исследованы структуры дегидратированных пленок, полученных из водных растворов молекул альбумина и осажденных на твердых стеклянных подложках в ЭП; при этом варьировались условия дегидратации. Полученные структуры изучены под микроскопом (с регистрацией микрофотографий) в проходящем через пленки свете и отраженном от подложек. Анализ микрофотографий позволил выявить характерные неоднородности, возникающие в пленке, и выделить их основные типы. Определены оптимальные области параметров, в которых режимы получения пленок преимущественно реализуются. Впервые для интерпретации пространственно-неоднородной структуры дегидратированных биомолекулярных пленок предложена «пузырьковая» модель, в которой учитываются процессы, обусловленные растворенными газами в исходных растворах.

Ключевые слова: самоорганизованная структура, биомолекулярная пленка, микроэлектроника, биологическая молекула, электрохимия, биосенсор

Ссылка при цитировании: Баранов М.А., Цыбин О.Ю., Величко Е.Н. Структурированные биомолекулярные пленки для микроэлектроники // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 85–99. DOI: 10.18721/JPM.14106

STRUCTURED BIOMOLECULAR FILMS FOR MICROELECTRONICS

M.A. Baranov, O.Yu. Tsybin, E.N. Velichko

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,
St. Petersburg, Russian Federation

In order to develop the technology for dehydration of biomolecular films with specified parameters under electrostatic field (EF), the structures of dehydrated films obtained from aqueous solutions of albumin molecules and deposited on the solid glass substrates in the EF have been studied, dehydration conditions being varied. The resulting structures were examined under microscope (with recording the micrographs) in the light passing through the films and in the one reflected from the substrates. An analysis of the micrographs made it possible to reveal characteristic inhomogeneity arising in the films and recognize their main types. The optimal regions of parameters in which the film production modes were predominantly realized were found. For the first time, a "bubble" model for interpretation of the spatially inhomogeneous structure of dehydrated biomolecular films was put forward. In the model, the processes conditioned by dissolved gases in the initial solutions were taken into account.

Keywords: self-organized structure, biomolecular film, microelectronics, biological molecule, electrochemistry, biosensor

Citation: Baranov M.A., Tsybin O.Yu., Velichko E.N., Structured biomolecular films for microelectronics, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 85–99. DOI: 10.18721/JPM.14106

Введение

Электронные устройства, содержащие слой органических молекул на поверхности твердого тела, приобретают в последние годы быстро растущее научно-техническое и прикладное значение [1 – 13]. Исследование и применение полимерных, в том числе белковых, органических однослойных и многослойных пленок на твердой подложке объединяют физику, химию, материаловедение, биологию, медицину, электронику, наномасштабную инженерию и др. Биомолекулярные пленки необходимы также в технологии производства белков, важны при изучении секвенирования генома человека, природы белков и во многих других областях, начиная от пищевых технологий и кончая экологическими проблемами [14 – 21].

При реализации технологий формирования пленок на подложках выявлены процессы, приводящие к хаотическим или упорядоченным неоднородностям [1 – 8]. Например, происходит образование поверхностных пространственных неоднородностей пленки в виде узоров различных размеров, порядка, морфологии и сложности. Такие узоры содержат тонкие прямые и кривые линии, разделяющие участки структуры, поверхностные упорядоченные геометрические фигуры выпуклостей и впадин, а также выступы, канавки и трещины различной глубины, в том числе с дальним пространственным порядком [4, 5]. В тонких пленках выявлены спиральные, радиальные, кольцеобразные трещины и т. п. Некоторые формы повторяются и бывают стабильными; с ними, вероятно, связаны наблюдаемые специфические физико-химические свойства пленок и возможности их использования. Например, медицинскими исследованиями установлено, что структуру узоров на высушенных образцах проб крови, слюны, слезы человека можно использовать для диагностики заболеваний [6 – 8].

Для применения биомолекулярных пленок в микро- и наноэлектронике эффективным и универсальным может быть способ изотермического обезвоживания (дегидратации), однако природа возникающих неоднородностей и возможности их устранения изучены пока недостаточно [22 – 24].

Цель данного исследования – разработка технологии дегидратирования биомолекулярных пленок с заданными параметрами под действием комнатной и повышенной температуры и электростатического поля, перспективных для применения в микроэлектронике.

Метод изотермического обезвоживания

Технология удаления воды из предварительно подготовленного раствора (обезвоживание, дегидратация, высушивание) основана на фундаментальных физических принципах. Испарение атомов и молекул определяется уравнением Клаузиуса – Клапейрона и дает, в принципе, канал потерь нейтральных частиц:

$$n_a = bT^{1/2}\exp\left(-l_a/kT\right),$$

где n_a – число частиц, испаряющихся с единичной площадки в единицу времени; l_a, Дж, – работа испарения частицы; T, К, – температура; k, Дж/К, – постоянная Больцмана; b, $К^{-1/2}$, – тепловая константа испарения.

На массовый транспорт воды с жидких поверхностей влияют температура, состав газовой фазы, активность поверхностных веществ, объемных реологических свойств и кинетика транспорта пара и потока тепла через поверхностную область, а также геометрия экспериментальных условий [25 – 27].

Среди геометрий, доступных для разработки теории процесса испарения с поверхности, оптимальной следует считать геометрию пленки, для которой характерна незначительная толщина, по сравнению с двумя другими измерениями. Изотермические процессы в таких объектах позволяют упростить их аналитическое рассмотрение. Когда самоорганизованное структурирование поверхности дегидратированной биомолекулярной пленки на подложке обусловлено процессом испарения растворителя при постоянной температуре, на пленке возникают стационарные, в том числе периодические узоры с широким спектром морфологии, причем характерный размер узоров определяется начальной толщиной пленки.

Неоднородность поверхностных покрытий, которая возникает во время дегидратации, вызвана межфазной динамической нестабильностью, обусловленной градиентами поверхностного натяжения и называемой нестабильностью Марангони [28, 29]. Основные факторы, а именно сила поверхностного натяжения и сила вязкого трения, изменяются по мере изменения количества растворителя и температуры.

Ввиду сложного состава биологических жидкостей и многообразия физических, химических, механических и прочих процессов, механизмам формирования различных линий рисунков, вызванного спонтанным испарением, до сих пор не дано должного объяснения. Из-за сложности узоров трудно объяснить все детали их образования аналитическими формулами или одной моделью [30]. Механизм формирования логарифмических спиральных трещин связывают с направленным распространением фронта механического давления [31].

На образование рисунка влияют структура подложки [32], температурные и влажностные условия, электрическое и магнитное поля, приложенные к объектам в процессе их дегидратации.

В исследовании [33] капли геля лапонита (Laponite RD – синтетический слоистый силикат) высушивали под действием радиального электрического поля. Это приводило к воспроизводимым узорам, которые зависели от силы, направления и времени воздействия поля. Под действием электрического поля узоры на пленке появлялись после рассеяния определенного количества энергии.

Активные электронно-физические свойства тонких биомолекулярных пленок были обнаружены путем импедансных измерений и теоретических флуктуационных исследований [34, 35]. Такие свойства могут определяться периодической структурой пленок, которая выявлена оптическими измерениями и методами нестационарной термодинамики [36, 37].

Обнаружены корреляции динамики формирования белковых пленок с концентрацией ионной компоненты в исходном растворе, что позволило связать происходящие процессы с процессами поляризации молекул объекта (их электрической природой) [38, 39]. Воздействие электрического поля на белковые (полипептидные) биомолекулярные пленки имеет важное значение для применения в микроэлектронике, однако соответствующие данные в научно-технической литературе практически не представлены.

Известно, что биомолекулярная электропроводность обеспечивается носителями заряда разного рода, электронами и протонами в молекулах, имеет ключевое значение для процессов, которые управляют биологическим миром; ее можно реализовать в электронных устройствах. В последнее время обнаружились реальная научная основа и технологическая жизнеспособность биомолекулярной электроники и ионики [9, 10]. Достигнут значительный прогресс в области создания биомолекулярных материалов в виде пленочных метаматериалов, которые в составе микроэлектронных приборов могут поддерживать ионные и электронные токи на пространственном протяжении порядка миллиметров. Структура биомолекулярных метаматериалов определяет электрический импеданс в широкой полосе частот, а также характеристики электронных устройств, в которые встроены такие материалы.

В данной работе мы экспериментально изучали пространственную структуру дегидратированных белковых пленок на диэлектрической подложке при изотермическом высушивании из водного раствора альбумина при различных значениях концентрации исходных растворов, температуры и приложенного постоянного электрического поля напряженностью от нуля до приблизительно 1 В/см. В процессах дегидратации растворов нами впервые опробованы крупные молекулы, представляющие интерес в качестве материалов микро- и наноэлектроники.

Методическая часть

Для экспериментов использовали белок альбумин (Human albumin) фирмы Biotest Pharma GmHb (Драйайх, земля Гессен, Германия), на основе которого готовили водный раствор с исходной концентрацией 20 % (200 г/л). Из первичного раствора для каждого опыта были подготовлены рабочие пробы объемом 2 мл, каждая с концентрациями 2, 5 и 10 %. Рабочие пробы помещали в стеклянные чашки Петри диаметром 20 мм.

Упрощенное изображение экспериментальной установки для исследования пространственной структуры белковой пленки при ее дегидратации в термостате, в электрическом поле показано на рис. 1. Она содержала плоский конденсатор с неподвижными обкладками в виде пластин (F. Pl.) из нержавеющей стали размером 100 × 100 мм; расстояние между ними составляло 20 мм. Экспериментальные образцы в виде растворов рабочих проб в чашке Петри (Petri dish) помещали между пластинами в электрическом поле (напряженность составляла 0; 0,5; 1,2 и 5,0 В/см) и устанавливали в термостат (Th) (значения температуры были 293, 298, 303, 308 и 313 K) на период дегидратации, который варьировали в широких пределах, от одного часа и более. Для сушки пленок использовался термостат ТС-1/80-СПУ с принудительной циркуляцией воздуха, влажность которого в камере термостата составляла 20 ± 1 %.

Изображения полученных пленок регистрировали в проходящем свете с помощью оптического микроскопа Olympus CX 43 и USB-камеры. Использовались камера Altami UHCCD05000KPA с разрешением 1280 × 980, сенсор SONY ICX282AQ и объектив микроскопа PlanC N с усилением 40×, апертурой 0,10, увеличением 40 крат и глубиной 24 бита. Спектральный диапазон составлял 380 – 650 нм.

Все микрофотографии, представленные в данной статье, зарегистрированы в едином

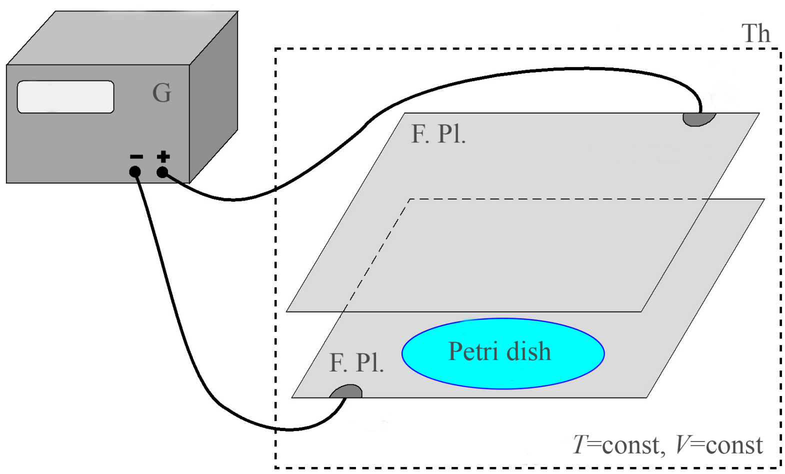


Рис. 1. Схематическое изображение экспериментальной установки для исследования пространственной структуры белковой пленки при ее дегидратации в электрическом поле: G – генератор электрического поля; Th – термостат; F. Pl. – неподвижные пластины конденсатора; Petri dish – чашка Петри с водным раствором

масштабе. Средняя толщина полученных образцов составляла 200 ± 10 мкм при положениях измерительного щупа на образце в центре кюветы и на краю.

Результаты экспериментальных исследований

На рис. 2 представлены изображения пространственно-временных структур в пленках белка альбумина, полученных при различных значениях напряженности приложенного однородного электрического поля. Выявлены пространственно-периодические изображения с темными тонкими прямыми линиями, разграничивающими отдельные участки, а также с прозрачными дисками, имеющими кольцевые или спиральные границы.

Типичные размеры и плотность расположения дисков и спиралей после высушивания пленок альбумина изменялись при варьировании внешних условий. Высота дисков и спиралей h составляла около 100 мкм, что соотносится с толщиной пленки H от $h << H$ до $h \approx H$. При квазипериодическом заполнении поверхности такими блоками пленка приобретала пространственную упорядоченность с существенными признаками метаматериала. Основные наблюдаемые элементы структуры на рис. 2 и далее представлены двумя формами:

разграничительными отрезками прямых и кривых линий;

сетью дисковых гранул.

На рис. 2 все представленные изображения имеют одинаковый масштаб, на первом изображении приведена масштабная линейка (300 мкм). Вероятно, разграничительные линии обусловлены складками-уплотнениями в структуре полученной пленки. На участках между прямыми линиями видны

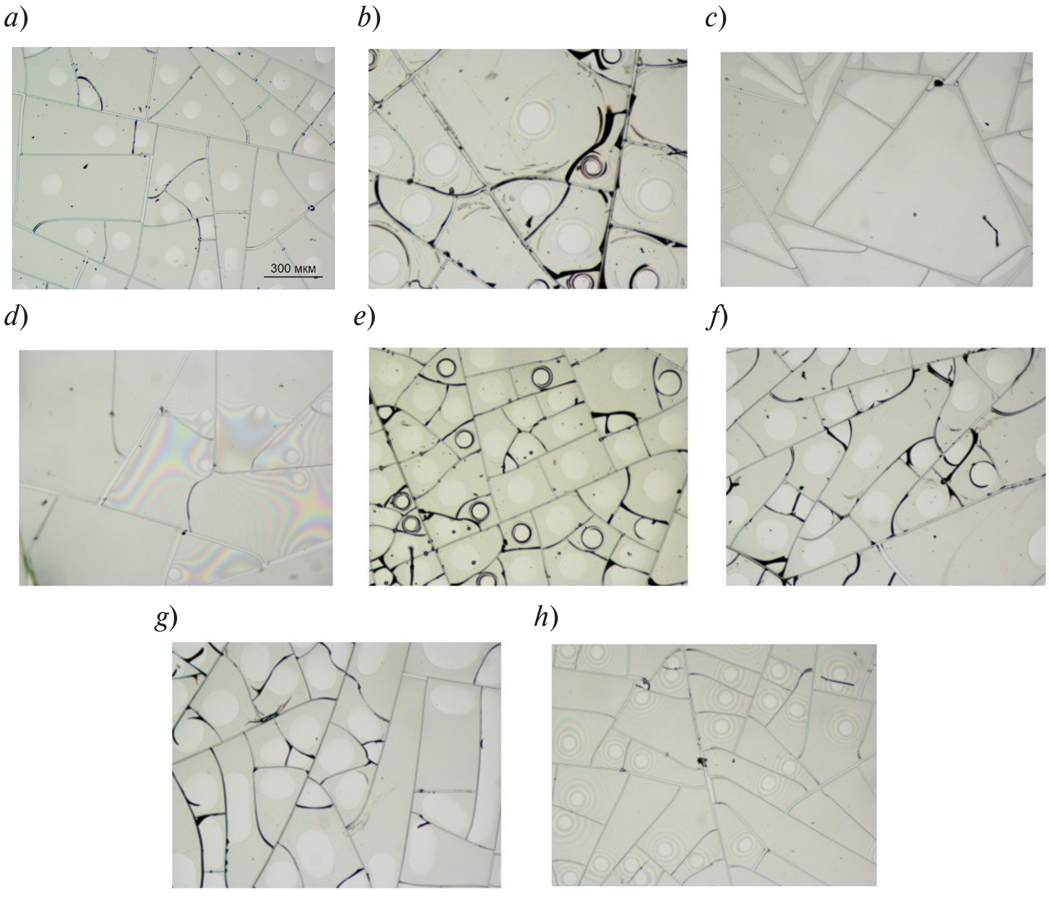


Рис. 2. Микрофотографии белковых пленок, полученных при различных значениях концентрации раствора альбумина (2 % (*a* – *d*) и 5 % (*e* – *h*)) и напряженности электрического поля, В/см: 0,5 (*a*, *e*), 1,0 (*b*, *f*), 2,0 (*c*, *g*), 5,0 (*d*, *h*); температура дегидратации $T = 310$ K

компактные малогабаритные дисковые гранулы, прозрачные или ограниченные темными кольцевыми и спиральными стенками (см. рис. 2). Спиральные структуры вокруг дисков подобны известным, опубликованным в научно-технической литературе [40, 41]. В аналогичном исследовании [41] получены интерференционные кольца Ньютона в процессе сушки образцов, что авторы связывают с отслоением частей пленки и образованием воздушной прослойки между образцом и стеклянной подложкой. В наших экспериментах также образуются подобные структуры. Как и в работе [41], они могут быть связаны с дифракцией света на пузырьках воздуха и последующей интерференцией.

В статье [40] и других работах образование спиралей связывают с термомеханическими напряжениями, динамикой роста и осмотическим давлением. Для анализа динамики роста мы фиксировали результаты изотермического обезвоживания белковых пленок в разные моменты времени, наблюдая процесс растрескивания пленок. На рис. 3 приведены фотографии (с масштабной линейкой) образованных неоднородностей с шагом во времени 1 с. Детальное совпадение изображений показывает, что процессы происходят замедленно и быстрых изменений не наблюдается.

Термомеханические напряжения и адгезия к подложке зависели от массы остаточной воды, которую определяли методом взвешивания. Полученная зависимость массы воды от концентрации белка в исходном растворе представлена на рис. 4.

Зависимость (рис. 4) имеет плавный спад при увеличении исходной концентрации альбумина до 15 % (по массе). В этом режиме пленка имела прочную связь с подложкой. При исходной концентрации альбумина около 20 % и более, готовая пленка становилась нестабильной, с плохой адгезией к подложке. Если сопоставлять полученные нами результаты с численными данными работы [42], то можно анализировать зависимость свободной энергии сухой пленки от массы остаточной воды, а также стабильность и адгезию пленок. Однако такой анализ выходит за рамки данной работы и здесь не приведен.

На рис. 5 представлены изображения пространственной структуры пленок белка альбумина при различных значениях температуры дегидратации и исходной концентрации белка альбумина в рабочей пробе.

Изменения температуры и концентрации белка альбумина в пробе в процессе дегидратации оказывали совместное влияние на образование структур дисковых гранул. В некоторых режимах микроскопические гранулы видоизменялись от прозрачных дисков к таковым, имеющим кольцевое или спиральное подчеркивание. Чем выше была концентрация исходного раствора рабочей пробы, тем больше увеличивались поверхностная плотность и суммарная площадь спиральных форм. Чем выше была температура дегидратации, тем стабильнее получались пленки и ровнее линии, разделяющие участки поверхности. На рис. 5 пунктирная кривая отделяет область с увеличенной поверхностной плотностью дисковых структур, в том числе кольцевых и спиральных форм (последние лежат преимущественно выше кривой).

На рис. 6 показана экспериментально полученная криволинейная поверхность, разделяющая области повышенной и пониженной концентрации дисковых (в том числе кольцевых и спиральных) структур в дегидратированных пленках белка альбумина. Данная поверхность представлена в зависимости от трех параметров: исходной концентрации раствора, температуры дегидратации и напряженности приложенного внешнего электрического поля. В области, лежащей ниже этой поверхности, спиральные структуры, как правило, не формировались. Качество пленок оценивалось в этой области наблюдаемым разделением на участки с прямолинейными или криволинейными границами.

При достаточно высоких значениях исходной концентрации раствора, температуры дегидратации и напряженности внешнего электрического поля, в полученных пленках наблюдалась повышенная концентрация прозрачных дисковых гранул, кольцевых и спиральных структур. Эти результаты позво-

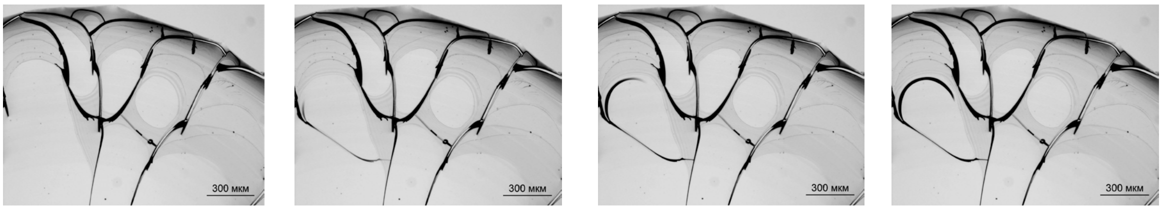


Рис. 3. Изображения неоднородностей пленки в различные моменты времени с шагом 0,25 с.
Первый кадр соответствует 10 с после эвакуации объекта из термостата

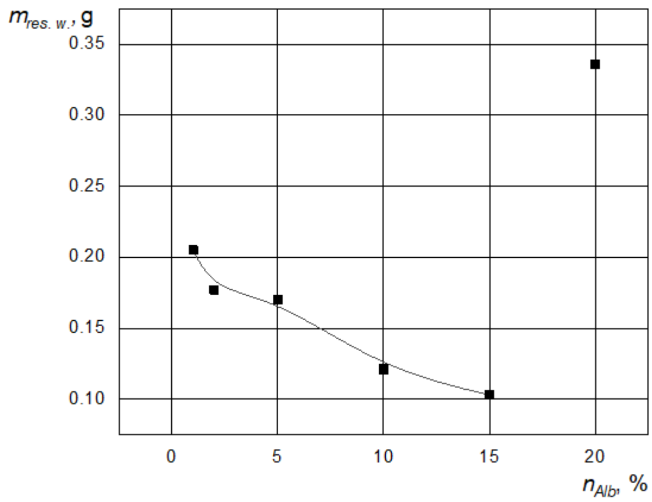


Рис. 4. Зависимость массы остаточной воды в дегидратированных пленках альбумина от концентрации альбумина в исходном растворе

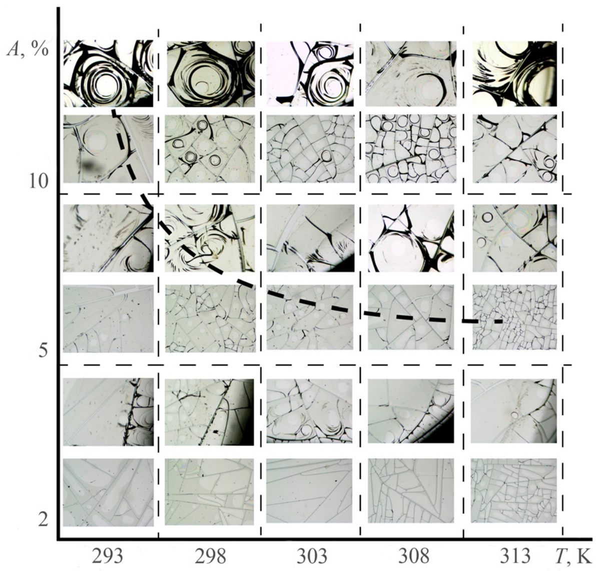


Рис. 5. Изображения пространственных структур в белковых пленках альбумина, полученных при различных значениях исходной концентрации раствора белка альбумина (определена по массе компонентов и отложена по оси ординат) и температуры дегидратации.
Пунктирной кривой показана примерная граница области с увеличенной поверхностной плотностью дисковых структур (область лежит выше кривой)

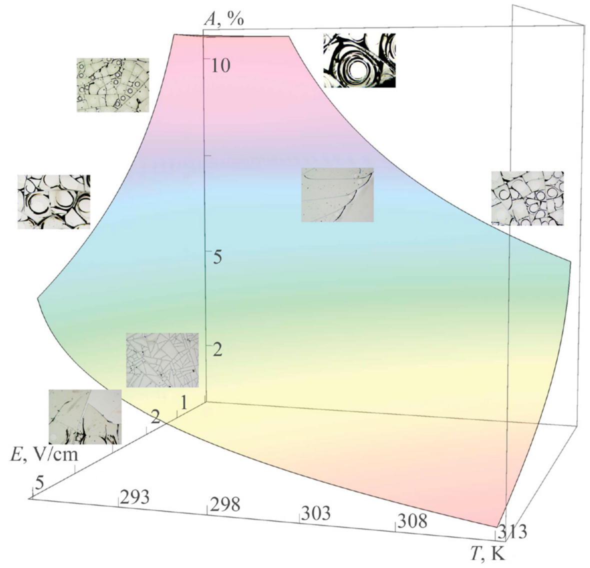


Рис. 6. Криволинейная поверхность (получена экспериментально), разделяющая области повышенной и пониженной концентрации спиральных структур в дегидратированных пленках белка альбумина как функция исходной концентрации раствора, температуры дегидратации и напряженности приложенного электрического поля

ляют оценить характер физических процессов, происходящих на этапе дегидратации пленок, и предложить соответствующие модели их формирования.

Обсуждение результатов

На основе данных, представленных на рис. 6, появляется возможность развития модельных представлений происходящих физических процессов. Предлагаемая модель должна, на наш взгляд, связать образование сферических полостей (пузырьков) с пониженной плотностью частиц в пленках раствора на этапе дегидратации. Этими частицами выступают, скорее всего, мелкие объемы воздуха, выделяющегося из раствора. Действительно, для объяснения явления образования пузырьков следует учесть наличие растворенного воздуха при атмосферном давлении в исходной рабочей пробе. По внешним признакам, это есть подобие внутреннего парообразования при нагреве жидкостей. Однако количественное рассмотрение предполагает более сложные зависимости от параметров процессов, которые еще недостаточно изучены.

Во время испарения молекул воды происходит сближение границ пленки, растворенный воздух сжимается, что приводит к образованию газовых пузырьков. При анализе микрофотографий пленок (полученных в проходящем свете), пузырьки выглядят как прозрачные диски. Вследствие высоких значений сил вязкости раствора и поверхностного натяжения миграция пузырьков происходит медленно, и часть из них остается в связанном виде в дегидратированной пленке. При выходе воздуха на поверхность пленки, возникает вероятность растяжения белковой массы на границе канала движения воздушного пузырька, а такое растяжение приводит к уплотненному кольцевому состоянию.

Предлагаемая простая модель может качественно представить процессы формирования наблюдаемых структур с учетом наличия растворенного воздуха в пленке, но требует более полного количественного описания. По нашему мнению, данная модель более достоверна, чем известные ранее, и предлагается впервые. В пользу нашей модели свидетельствует однородное распределение размера пузырьков. Кроме того, модель учитывает физические процессы растворения (абсорбции) и выделения газов в жидкостях. Средний диаметр пузырьков много меньше (на порядок и более) толщины пленки. Отслоение участков пленок от подложки не может быть столь однородным по поверхности и форме, и, кроме того, не может воспроизводиться для разных подложек в различных режимах измерений. Рассмотрение процессов, связанных с растворенным воздухом, оказывается достаточным для интерпретации полученных результатов и позволяет не привлекать второстепенные физические эффекты.

Выход пузырьков воздуха на поверхность пленки может объяснить не только дисковую форму образованных узоров, но и возникновение спиральных форм, что дополняет или даже замещает традиционную термомеханическую модель [43].

Пространственно-неоднородная пленка в электрическом поле может формироваться под действием нестационарных температурных и парогазовых механических напряжений, а также внешнего электростатического давления в условиях латерального и объемного перераспределения зарядов.

Результаты измерений (см. рис. 6) свидетельствуют о существенном влиянии внешнего электростатического поля. Действительно, давление электрического поля на поверхность вследствие поляризации молекул белка и воды пропорционально квадрату напряженности электрического поля E:

$$\frac{F}{S} = \varepsilon\varepsilon_0\sigma E^2,$$

где F, Н, – локальное значение силы, действующей на площадку S (м^2); E, В/м, – напряженность электростатического поля; ε – относительная диэлектрическая проницаемость вещества пленки в соответствующем фазовом состоянии; ε_0, Ф/м, – диэлектрическая постоянная ($\varepsilon_0 = 8{,}85\cdot10^{-12}$ Ф/м); σ, См/м, – удельная электрическая проводимость.

Нормальная к поверхности пленки компонента электрического поля E может вызывать латеральное перераспределение зарядов в объеме жидкой фазы ввиду возникновения градиента концентрации ионов и созданного ими потенциала. Диэлектрическая константа ε_0 создает неоднородное расклинивающее давление. Это давление может усиливать деформацию пленки дополнительно к термомеханическим эффектам, приводить к образованию линий уплотнений, разделяющих отдельные участки поверхности. Однако следует отметить, что в целом действие электростатического поля имеет существенно более сложный характер.

Поляризующее электрическое поле в водном растворе пропорционально концентрации ионов примеси белка, а подвижность ионов примеси пропорциональна температуре процесса. Рост концентрации примеси и температуры приводят к увеличению плотности ионного тока и, соответственно, латерального и объемного перераспределения зарядов. Латеральное и объемное перераспределение зарядов включает электрофоретическое объемное движение на стадии жидкой фазы, а также индуцированные поверхностные заряды на переходной стадии к твердой фазе.

Заключение

Проведены исследования структуры дегидратированной пленки, полученной из водного раствора молекул альбумина на твердой стеклянной поверхности под действием повышенной температуры и внешнего электростатического поля. Впервые для дегидратации были опробованы растворы крупных молекул, представляющих интерес для технологий микроэлектроники. При дегидратации варьировали исходную концентрацию раствора молекул, температурные условия и напряженность приложенного электростатического поля. Способ исследования полученных пленок состоял в регистрации микрофотографий в проходящем пленку свете и отраженном от подложки. При анализе полученных снимков были выявлены характерные неоднородности двух основных типов, возникающие в пленке:

в виде участков, разделенных тонкими линиями, в виде микроскопических дисковых гранул (в том числе с кольцевыми или спиральными подчеркнутыми границами), распределенных по поверхности.

В итоге были определены области режимов, в которых первый или второй тип неоднородности преимущественно реализуются.

Впервые для интерпретации пространственно-неоднородной структуры дегидратированной биомолекулярной пленки предложена «пузырьковая» модель, в которой учитываются процессы, обусловленные растворенными газами в исходном растворе.

Найдены корреляции структуры формируемых белковых пленок с температурными условиями, концентрацией биомолекул в исходном растворе и приложенным электрическим полем, характерные для исследуемых процессов дегидратации. Это позволяет выявить связь части указанных процессов с их термомеханической и электрической природой.

Эффекты растворенных газов и пузырьковый механизм следует учитывать и при описании процессов, происходящих в пленках при других способах приготовления, например Ленгмюра – Блоджетт и «слой-за-слоем».

Предлагаемый механизм дегидратации находится в стадии суперкомпьютерной и экспериментальной верификации. Полученные нами данные можно использовать при разработке технологий получения высококачественных пленок с заданными параметрами, в частности для применения в микроэлектронике.

Благодарности

Авторы выражают благодарность доктору биологических наук, профессору СПбПУ А.Н. Скворцову за полезное обсуждение материалов работы.

Работа выполнена в рамках Государственного задания на проведение фундаментальных исследований (код темы FSEG-2020-0024).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Biswas A., Bayer I.S., Biris A.S., et al.** Advances in top-down and bottom-up surface nanofabrication: techniques, applications & future prospects // Advances in Colloid and Interface Science. 2012. Vol. 170. No. 1-2. Pp. 2–27.

2. **Krishnan V., Sakakibara K., Mori T., Hill J.P., Ariga K.** Manipulation of thin film assemblies: recent progress and novel concepts // Current Opinion in Colloid & Interface Science. 2011. Vol. 16. No. 6. Pp. 459–469.

3. **Moores B., Hane F., Eng L., Leonenko Z.** Kelvin probe force microscopy in application to biomolecular films: frequency modulation, amplitude modulation, and lift mode // Ultramicroscopy. 2010. Vol. 110. No. 6. Pp. 708–711.

4. **Гольбрайх Е., Рапис Е.Г., Моисеев С.С.** О формировании узора трещины в свободно высыхающей пленке водного раствора белка // Журнал технической физики. 2003. Т. 73. № 10. С. 116–121.

5. **Яхно Т.А.** Кристаллизация хлорида натрия из высыхающих капель белково-солевых растворов с разным содержанием белка // Журнал технической физики. 2015. Т. 85. № 11. С. 30–37.

6. **Шатохина С.Н., Шабалин В.Н.** Морфология биологических жидкостей – новое направление в клинической медицине // Альманах клинической медицины. 2003. № 6. С. 404–422.

7. **Шатохина С.Н., Захарова Н.М., Дедова М.Г., Самбулов В.И., Шебалин В.Н.** Морфологический маркер прогрессии новообразования при раке гортани // Вопросы онкологии. 2013. Т. 59. № 2. С. 66–70.

8. **Шатохина С.Н., Александрин В.В., Шатохина И.С., Кубатиев А.А., Шабалин В.Н.** Маркер ишемии головного мозга в твердофазных структурах сыворотки крови // Бюллетень экспериментальной биологии и медицины. 2017. Т. 164. № 9. С. 351–355.

9. **Величко Е.Н., Цыбин О.Ю.** Биомолекулярная электроника. Введение. СПб.: Изд-во Политехнического ун-та, 2011. 256 с.

10. **Amdursky N., Głowacki E.D., Meredith**

P. Macroscale biomolecular electronics and ionics //Advanced Materials. 2019. Vol. 31. No. 3. P. 1802221.

11. **Iost R.M., Crespilho F.N.** Layer-by-layer self-assembly and electrochemistry: applications in biosensing and bioelectronics // Biosensors and Bioelectronics. 2012. Vol. 31. No. 1. Pp. 1–10.

12. **Siqueira Jr. J.R., Caseli L., Frank N. Crespilho F.N., Zucolotto V., Osvaldo N., Oliveira O.N.** Immobilization of biomolecules on nanostructured films for biosensing // Biosensors and Bioelectronics. 2010. Vol. 25. No. 6. Pp. 1254–1263.

13. **Iost R.M., Madurro J.M., Brito-Madurro A.G., Nantes I.L., Caseli L., Crespilho F.N.** Strategies of nano-manipulation for application in electrochemical biosensors // International Journal of Electrochemical Science. 2011. Vol. 6. No. 7. Pp. 2965–2997.

14. **Szott L.M., Horbett T.A.** Protein interactions with surfaces: Computational approaches and repellency // Current Opinion in Chemical Biology. 2011. Vol. 15. No. 5. Pp. 683–689.

15. **Yoneda J.S., Miles A.J., Araujo A.P.U., Wallace B.A.** Differential dehydration effects on globular proteins and intrinsically disordered proteins during film formation // Protein Science. 2017. Vol. 26. No. 4. Pp. 718–726.

16. **Xin S., Li X., Wang Q., Huang R., Xu X., Lei Z., Deng H.** Novel layer-by-layer structured nanofibrous mats coated by protein films for dermal regeneration // Journal of Biomedical Nanotechnology. 2014. Vol. 10. No. 5. Pp. 803–810.

17. **Haynie D.T., Zhang L., Rudra J.S., Zhao W., Zhong Y., Palath N.** Polypeptide multilayer films // Biomacromolecules. 2005. Vol. 6. No. 6. Pp. 2895–2913.

18. **Zhang X., Crivoi A., Duan F.** Three-dimensional patterns from the thin film drying of amino acid solutions // Scientific Reports. 2015. Vol. 5. P. 10926.

19. **Ferreira C.O., Carla A. Nunes C.A., Delgadillo I., Lopes-da-Silva J.A.** Characterization of chitosan-whey protein films at acid pH // Food Research International. 2009. Vol. 42. No. 7. Pp. 807–813.

20. **Гольбрайх Е., Рапис Е.Г., Моисеев Е.С.** О формировании узора трещины в свободно высыхающей пленке водного раствора белка // Журнал технической физики. 2003. Т. 73. № 10. С. 116–121.

21. **Iost R.M., Silva W.C., Madurro J.M., Brito-Madurro A.G., Ferreira L.S., Crespilho F.N.** Electrochemical nano (bio) sensors: advances, diagnosis and monitoring of diseases // Frontiers in Bioscience. 2011. Vol. 3E. No. 2. Pp. 663–689.

22. **Kovalchuk M.V., Boikova S., Dyakova Yu.A., et al.** Structural characteristics of lysozyme Langmuir layers grown on a liquid surface from an oligomeric mixture formed during the early stages of lysozyme crystallization // Thin Solid Films. 2019. Vol. 677. 1 May. Pp. 13–21.

23. **Бойкова А.С., Дьякова Ю.А., Ильина К.Б., Марченкова М.А., Серегин А.Ю., Просеков П.А., Волковский Ю.А., Писаревский Ю.В., Ковальчук М.В.** Получение многослойных пленок на основе белка лизоцима и ионов осадителя (йода и калия) на кремниевой подложке модифицированным методом Ленгмюра – Шеффера // Кристаллография. 2018. Т. 63. № 5. С. 703–707.

24. **Ковальчук М.В., Бойкова А.С., Дьякова Ю.А., Марченкова М.А., Ополченцев А.М., Писаревский Ю.В., Просеков П.А., Серегин А.Ю.** Модификация метода Ленгмюра – Шеффера для получения упорядоченных белковых пленок // Кристаллография. 2017. Т. 62. № 4. С. 650–656.

25. **Bellich B., Elisei E., Heyd R., Saboungi M.-L., Cesàro A.** Isothermal dehydration of thin films // Journal of Thermal Analysis and Calorimetry. 2015. Vol. 121. No. 3. Pp. 963–973.

26. **Guvendiren M., Yang S., Burdick J.A.** Swelling-induced surface patterns in hydrogels with gradient crosslinking density // Advanced Functional Materials. 2009. Vol. 19. No. 19. Pp. 3038–3045.

27. **Heyd R., Rampino A., Bellich B., Elisei E., Cesàro A., Saboungi M.-L.** Isothermal dehydration of thin films of water and sugar solutions // The Journal of Chemical Physics. 2014. Vol. 140. No. 12. P. 124701.

28. **Zhu J.L., Shi W.Y., Feng L.** Bénard–Marangoni instability in sessile droplet evaporating at

constant contact angle mode on heated substrate // International Journal of Heat and Mass Transfer. 2019. Vol. 134. May. Pp. 784–795.

29. **Li P., Chao Y.** Marangoni instability of self-rewetting films modulated by chemical reactions flowing down a vertical fibre // Chemical Engineering Science. 2020. Vol. 227. 14 December. P. 115936.

30. **Gao M.N., Huang X.F., Zhao Y.P.** Formation of wavy-ring crack in drying droplet of protein solutions // Science China Technological Sciences. 2018. Vol. 61. No. 7. Pp. 949–958.

31. **Néda Z., Leung K.-t., Józsa L., Ravasz M.** Spiral cracks in drying precipitates // Physical Review Letters. 2002. Vol. 88. No. 9. P. 095502.

32. **Liu T., Luo H., Ma J., Xie W., Wang Y., Jing G.** Surface roughness induced cracks of the deposition film from drying colloidal suspension // The European Physical Journal. E. 2016. Vol. 39. No. 2. P. 24.

33. **Khatun T., Dutta T., Tarafdar S.** Crack formation under an electric field in droplets of laponite gel: Memory effect and scaling relations // Langmuir. 2013. Vol. 29. No. 50. Pp. 15535–15542.

34. **Baranov M., Rodion S., Alekseenko A.** Optical and electrical properties of protein films // Proceedings of the 2018 IEEE International Conference on Electrical Engineering and Photonics (EExPolytech). Saint Petersburg, Russia, 22–23 October 2018. IEEE Catalog Number: CFP18R49-POD, 2018. Pp. 186–188.

35. **Bibi F., Villain M., Guillaume C., Sorli B., Gontard** N. A review: origins of the dielectric properties of proteins and potential development as biosensors // Sensors. 2016. Vol. 16. No. 8. P. 1232.

36. **Baranov M.A., Alekseenko A.P., Velichko E.N.** Study of electric properties of self-assembled films of albumin during their dehydration // Journal of Physics: Conference Series. IOP Publishing, 2018. Vol. 1124. No. 3. P. 031013.

37. **Galus S., Lenart A.** Optical, mechanical, and moisture sorption properties of whey protein edible films // Journal of Food Process Engineering. 2019. Vol. 42. No. 6. P. e13245.

38. **Velichko E., Zezina T., Baranov M., Nepomnyashchaya E., Tsybin O.** Dynamics of polypeptide cluster dipole moment for nano communication applications // “Internet of Things, Smart Spaces, and Next Generation Networks and Systems”, Proceedings of the 18-th International Conference, NEW2AN, and 11-th Conference, ruSMART 2018, St. Petersburg, Russia, August 27–29, 2018. Edited by O. Galinina, S. Andreev, S. Balandin, E. Koucheryavy. Switzerland: Springer, Cham, 2018. Pp. 675–682.

39. **Velichko E., Zezina T., Cheremiskina A., Tsybin O.** Nano communication device with embedded molecular films: effect of electromagnetic field and dipole moment dynamics // “Internet of Things, Smart Spaces, and Next Generation Networks and Systems”, Proceedings of the 15-th International Conference, NEW2AN 2015, and 8-th Conference, ruSMART 2015, St. Petersburg, Russia, August 26–28, 2015. Edited by S. Balandin, S. Andreev, E. Koucheryavy. Switzerland: Springer, Cham, 2015. Pp. 765–771.

40. **Gao M.N., Huang X.F., Zhao Y.P.** Formation of wavy-ring crack in drying droplet of protein solutions // Science China Technological Sciences. 2018. Vol. 61. No. 7. Pp. 949–958.

41. **Lazarus V., Pauchard L.** From craquelures to spiral crack patterns: influence of layer thickness on the crack patterns induced by desiccation // Soft Matter. 2011. Vol. 7. No. 6. Pp. 2552–2559.

42. **Velichko E.N., Baranov M.A., Mostepanenko V.M.** Change of sign in the Casimir interaction of peptide films deposited on a dielectric substrate // Modern Physics Letters A. 2020. Vol. 35. No. 3. P. 2040020.

43. **Fortier D., Shur Yu., Jorgenson T., Kanevskiy M.Z., Jones B.M., Jones K.W.** Self-organization of ice-wedge systems during their formation and degradation // Abstracts of the AGU Fall Meeting 2019. 9–13 December 2019, San Francisco, USA. Abstract C13E-1359.

Статья поступила в редакцию 02.11.2020, принята к публикации 25.01.2021.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

БАРАНОВ Максим Александрович – *ассистент Высшей школы прикладной физики и космических технологий Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
baranovma1993@gmail.com

ЦЫБИН Олег Юрьевич – *доктор физико-математических наук, профессор Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
oleg.tsybin@gmail.com

ВЕЛИЧКО Елена Николаевна – *кандидат технических наук, доцент, директор Высшей школы прикладной физики и космических технологий Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
velichko-spbstu@yandex.ru

REFERENCES

1. **Biswas A., Bayer I.S., Biris A.S., et al.,** Advances in top-down and bottom-up surface nanofabrication: Techniques, applications & future prospects, Advances in Colloid and Interface Science. 170 (1-2) (2012) 2–27.

2. **Krishnan V., Sakakibara K., Mori T., et al.,** Manipulation of thin film assemblies: recent progress and novel concepts, Current Opinion in Colloid & Interface Science. 16 (6) (2011) 459–469.

3. **Moores B., Hane F., Eng L., Leonenko Z.,** Kelvin probe force microscopy in application to biomolecular films: frequency modulation, amplitude modulation, and lift mode, Ultramicroscopy. 110 (6) (2010) 708–711.

4. **Golbraikh E., Rapis E.G., Moiseev S.S.,** On the crack pattern formation in a freely drying protein film, Technical Physics. 48 (10) (2003) 1333–1337.

5. **Yakchno T.A.,** Sodium chloride crystallization from drying drops of albumin-salt solutions with different albumin concentrations, Technical Physics. 60 (11) (2015) 1601–1608.

6. **Shatokhina S.N., Shabalin V.N.,** Morfologiya biologicheskikh zhidkostey – novoye napravleniye v klinicheskoy meditsine [Morphology of biological fluids is a new trend in clinical medicine], Almanac of Clinical Medicine. (6) (2003) 404–422 (in Russian).

7. **Shatokhina S.N., Zakharova N.M., Dedova M.G., et al.,** Morphological marker of tumor progression in laryngeal cancer, Problems in Oncology. 59 (2) (2013) 66–70 (in Russian).

8. **Shatokhina S.N., Aleksandrin V.V., Shatokhina I.S., et al.,** A marker of cerebral ischemia in solid state structures of blood serum // Bulletin of Experimental Biology and Medicine. 164 (3) (2018) 366–370.

9. **Velichko E.N., Tsybin O.Yu.,** Biomolekulyarnaya elektronika. Vvedeniye [Biomolecular electronics. Introduction], Polytechnic University Publishing, St. Petersburg, 2011 (in Russian).

10. **Amdursky N., Głowacki E. D., Meredith P.,** Macroscale biomolecular electronics and ionics, Advanced Materials. 31 (3) (2019) 1802221.

11. **Iost R.M., Crespilho F.N.,** Layer-by-layer self-assembly and electrochemistry: applications in biosensing and bioelectronics, Biosensors and Bioelectronics. 31 (1) (2012) 1–10.

12. **Siqueira Jr. J.R., Caseli L., Frank N., et al.,** Immobilization of biomolecules on nanostructured films for biosensing, Biosensors and Bioelectronics. 25 (6) (2010) 1254 –1263.

13. **Iost R.M., Madurro J.M., Brito-Madurro A.G., et al.,** Strategies of nano-manipulation for application in electrochemical biosensors, International Journal of Electrochemical Science. 6 (7) (2011) 2965–2997.

14. **Szott L.M., Horbett T.A.,** Protein interactions with surfaces: Computational approaches and repellency, Current Opinion in Chemical Biology. 15 (5) (2011) 683–689.

15. **Yoneda J.S., Miles A.J., Araujo A.P.U., Wallace B.A.,** Differential dehydration effects on globular proteins and intrinsically disordered proteins during film formation, Protein Science. 26 (4) (2017) 718–726.

16. **Xin S., Li X., Wang Q., et al.,** Novel layer-by-layer structured nanofibrous mats coated by protein films for dermal regeneration, Journal of Biomedical Nanotechnology. 10 (5) (2014) 803–810.

17. **Haynie D.T., Zhang L., Rudra J.S., et al.,** Polypeptide multilayer films, Biomacromolecules. 6 (6) (2005) 2895–2913.

18. **Zhang X., Crivoi A., Duan F.,** Three-dimensional patterns from the thin film drying of amino acid solutions, Scientific Reports. 5 (2015) 10926.

19. **Ferreira C.O., Carla A. Nunes C.A., et al.,** Characterization of chitosan-whey protein films at acid pH, Food Research International. 42 (7) (2009) 807–813.

20. **Golbraikh E., Rapis E.G., Moiseev S.S.,** On the crack pattern formation in a freely drying protein film, Technical Physics. 48 (10) (2003) 1333–1337.

21. **Iost R.M., Silva W.C., Madurro J.M., et al.,** Electrochemical nano (bio) sensors: advances, diagnosis and monitoring of diseases, Frontiers in Bioscience. 3E (2) (2011) 663–689.

22. **Kovalchuk M.V., Boikova S., Dyakova Yu.A., et al.,** Structural characteristics of lysozyme Langmuir layers grown on a liquid surface from an oligomeric mixture formed during the early stages of lysozyme crystallization, Thin Solid Films. 677 (1 May) (2019) 13–21.

23. **Boikova A.S., D'yakova Yu.A., Il'ina K.B., et al.,** Fabrication of multilayer films on the basis of lysozyme protein and precipitant (iodide and potassium) ions on a silicon substrate by the modified Langmuir–Schaefer method, Crystallography Reports. 63 (5) (2018) 719–723.

24. **Kovalchuk M.V., Boikova A.S., D'yakova Yu.A., et al.,** Modification of Langmuir–Schaefer method for fabrication of ordered protein films, Crystallography Reports. 62 (4) (2017) 632–638.

25. **Bellich B., Elisei E., Heyd R., et al.,** Isothermal dehydration of thin films, Journal of Thermal Analysis and Calorimetry. 121 (3) (2015) 963–973.

26. **Guvendiren M., Yang S., Burdick J.A.,** Swelling-induced surface patterns in hydrogels with gradient crosslinking density, Advanced Functional Materials. 19 (19) (2009) 3038–3045.

27. **Heyd R., Rampino A., Bellich B., et al.,** Isothermal dehydration of thin films of water and sugar solutions, The Journal of Chemical Physics. 140 (12) (2014) 124701.

28. **Zhu J.L., Shi W.Y., Feng L.,** Bénard – Marangoni instability in sessile droplet evaporating at constant contact angle mode on heated substrate, International Journal of Heat and Mass Transfer. 134 (May) (2019) 784–795.

29. **Li P., Chao Y.,** Marangoni instability of self-rewetting films modulated by chemical reactions flowing down a vertical fibre, Chemical Engineering Science. 227 (14 December) (2020) 115936.

30. **Gao M.N., Huang X.F., Zhao Y.P.,** Formation of wavy-ring crack in drying droplet of protein solutions, Science China Technological Sciences. 61 (7) (2018) 949–958.

31. **Néda Z., Leung K.-t., Józsa L., Ravasz M.,** Spiral cracks in drying precipitates, Physical Review Letters. 88 (9) (2002) 095502.

32. **Liu T., Luo H., Ma J., et al.,** Surface roughness induced cracks of the deposition film from drying colloidal suspension, The European Physical Journal, E. 39 (2) (2016) 24.

33. **Khatun T., Dutta T., Tarafdar S.,** Crack formation under an electric field in droplets of laponite gel: Memory effect and scaling relations, Langmuir. 29 (50) (2013) 15535–15542.

34. **Baranov M., Rodion S., Alekseenko A.,** Optical and electrical properties of protein films, Proceedings of the 2018 IEEE International Conference on Electrical Engineering and Photonics (EExPolytech), Saint Petersburg, Russia, 22–23 October 2018, IEEE Catalog Number: CFP18R49-POD (2018) 186–188.

35. **Bibi F., Villain M., Guillaume C., et al.,** A review: origins of the dielectric properties of proteins and potential development as biosensors, Sensors. 16 (8) (2016) 1232.

36. **Baranov M.A., Alekseenko A.P., Velichko E.N.,** Study of electric properties of self-assembled films of albumin during their dehydration, Journal of Physics: Conference Series, IOP Publishing. 1124 (3) (2018) 031013.

37. **Galus S., Lenart A.,** Optical, mechanical, and moisture sorption properties of whey protein edible films, Journal of Food Process Engineering. 42 (6) (2019) e13245.

38. **Velichko E., Zezina T., Baranov M., et al.,** Dynamics of polypeptide cluster dipole moment for nano communication applications, In the book: "Internet of Things, Smart Spaces, and Next Generation Networks and Systems", Proceedings of the 18-th International Conference, NEW2AN, and 11-th Conference, ruSMART 2018, St. Petersburg, Russia, August 27–29, 2018, Edited by O. Galinina, S. Andreev, S. Balandin, E. Koucheryavy, Springer, Cham, Switzerland (2018) 675–682.

39. **Velichko E., Zezina T., Cheremiskina A., Tsybin O.,** Nano communication device with embedded molecular films: effect of electromagnetic field and dipole moment dynamics, In the book: "Internet of Things, Smart Spaces, and Next Generation Networks and Systems", Proceedings of the 15-th International Conference, NEW2AN 2015, and 8-th Conference, ruSMART 2015, St. Petersburg, Russia, August 26–28, 2015, Edited by S. Balandin, S. Andreev, E. Koucheryavy, Springer, Cham, Switzerland (2015) 765–771.

40. **Gao M.N., Huang X.F., Zhao Y.P.,** Formation of wavy-ring crack in drying droplet of protein solutions, Science China Technological Sciences. 61 (7) (2018) 949–958.

41. **Lazarus V., Pauchard L.,** From craquelures to spiral crack patterns: influence of layer thickness on the crack patterns induced by desiccation, Soft Matter. 7 (6) (2011) 2552–2559.

42. **Velichko E.N., Baranov M.A., Mostepanenko V.M.,** Change of sign in the Casimir interaction of peptide films deposited on a dielectric substrate, Modern Physics Letters, A. 35 (3) (2020) 2040020.

43. **Fortier D., Shur Yu., Jorgenson T., et al.,** Self-organization of ice-wedge systems during their formation and degradation, In the book: Abstracts of the AGU Fall Meeting 2019, 9–13 December 2019, San Francisco, USA. Abstract C13E-1359.

Received 02.11.2020, accepted 25.01.2021.

THE AUTHORS

BARANOV Maksim A.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
baranovma1993@gmail.com

TSYBIN Oleg Yu.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
oleg.tsybin@gmail.com

VELICHKO Elena N.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
velichko-spbstu@yandex.ru

DOI: 10.18721/JPM.14107
УДК 517.946

ИНТЕГРАЛ ТИПА ДЮАМЕЛЯ ДЛЯ НАЧАЛЬНО-КРАЕВОЙ ЗАДАЧИ

Д.С. Аниконов, Д.С. Коновалова

Институт математики им. С.Л. Соболева СО РАН,
г. Новосибирск, Российская Федерация

В работе рассматривается начально-краевая задача для волнового уравнения для случая трех пространственных переменных. Вводится определение обобщенного решения и доказывается теорема существования и единственности. Предложена новая формула, являющаяся аналогом известного интеграла Дюамеля. Большая часть статьи посвящена анализу дифференциальных свойств решения. В частности, указано на возможность разрыва второй частной производной по времени на некоторой гиперплоскости и приведена величина ее разрыва. Это свойство позволило поставить обратную задачу об определении коэффициента уравнения и предложить алгоритм ее решения при условии ненулевого внутреннего воздействия на некотором двумерном подмножестве. При этом известными данными считались значения положения фиксированной колеблющейся точки в каждый момент времени.

Ключевые слова: волновое уравнение, интеграл Дюамеля, обратная задача, метод спуска, задача Коши

Ссылка при цитировании: Аниконов Д.С., Коновалова Д.С. Интеграл типа Дюамеля для начально-краевой задачи // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 100–110. DOI: 10.18721/JPM.14107

THE DUHAMEL-TYPE INTEGRAL FOR THE INITIAL BOUNDARY VALUE PROBLEM

D.S. Anikonov, D.S. Konovalova

Sobolev Institute of Mathematics,
Novosibirsk, Russian Federation

The paper considers the initial boundary value problem for the wave equation for the case of three spatial variables. The definition of a generalized solution has been introduced and the theorem of unique existence has been proved. A new formula was proposed, being an analog of the well-known Duhamel integral. The most part of the paper is devoted to the analysis of differential properties of the solution. In particular, the possibility of breaking the second partial time derivative on a certain hyperplane was indicated, and its break value was given. This property allowed us to set the inverse problem of determining the coefficient of the equation and propose an algorithm for solving it under the condition of non-zero internal action on a 2D subset. In this case, the known data were considered to be the values of a fixed oscillating point's position at every moment of time.

Keywords: wave equation, Duhamel integral, inverse problem, descent method, Cauchy problem

Citation: Anikonov D.S., Konovalova D.S., Duhamel-type integral for the initial boundary value problem, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 100–110. DOI: 10.18721/JPM.14107

Введение

В работе рассматривается гиперболическое уравнение

$$\frac{\partial^2 u(x,t)}{\partial t^2} - a^2 \Delta_x u(x,t) = f(x,t),\quad x = (x_1, x_2, x_3),\ x_3 > 0,\ t > 0, \tag{1}$$

вместе с начальными и краевыми данными

$$u(x,0) = \frac{\partial}{\partial t} u(x,0) = 0,\quad u(x_1, x_2, 0, t) = 0. \tag{2}$$

Прямая (начально-краевая) задача состоит в отыскании функции $u(x,t)$ из уравнения (1) и условий (2), при известных $a > 0$, $f(x,t)$.

В нашей работе доказывается теорема существования и единственности решения начально-краевой задачи и предлагается ранее неизвестная формула для ее решения, которую можно рассматривать как обобщение интеграла Дюамеля.

Напомним, что классический интеграл Дюамеля есть решение задачи Коши, когда ограничение на переменную x_3 и, соответственно, краевое условие отсутствуют. Наиболее специфической особенностью нашей формулы является использование под интегралом разрывной функции. Полученная формула также позволяет поставить и решить обратную задачу о нахождении коэффициента уравнения (1).

Кроме того, выводы исследования применяются к частному случаю двух пространственных переменных, когда функции $u(x,t)$, $f(x,t)$ зависят только от переменных (x_2, x_3, t), что может рассматриваться как реализация метода спуска.

Классическая теория смешанных задач изложена, например, в работах [1 – 3] для случая ограниченной области пространственных переменных. В многомерном случае известные нам результаты для неограниченных областей содержатся в монографии [3], где дополнительно предполагается финитность известных данных, что для ограниченного отрезка времени позволяет свести вопрос к уже изученному случаю ограниченной области.

Наши выводы для прямой задачи могут рассматриваться как обобщение классических результатов. В этом направлении имеются многочисленные публикации различных авторов. Не претендуя на сколько-нибудь значительный обзор, укажем только некоторые из них, например, работы [4 – 16]. Что касается обратной задачи в нашей статье, то отметим лишь работы других авторов подобной направленности [17 – 23], наиболее близкие к нашей.

Обозначения, определения и постановка прямой задачи

Введем следующие обозначения:

$$G^+ = \{(x_1, x_2, x_3, t), -\infty < x_1, x_2 < \infty, x_3 > 0, t > 0\},$$

$$G^- = \{(x_1, x_2, x_3, t), -\infty < x_1, x_2 < \infty, x_3 < 0, t > 0\},$$

$$G_1^+ = \{(x,t) \in G^+, at > x_3\},$$

$$G_2^+ = \{(x,t) \in G^+, at < x_3\},$$

$$G_1^- = \{(x,t) \in G^-, at > -x_3\},$$

$$G_2^- = \{(x,t) \in G^-, at < -x_3\};$$

единичную сферу в трехмерном пространстве обозначим Ω, а ее элементы – $\omega = (\omega_1, \omega_2, \omega_3)$, которые через сферические углы записываются в виде

$$\omega_1 = \sin\gamma\cos\varphi,$$

$$\omega_2 = \sin\gamma\sin\varphi,\ \omega_3 = \cos\varphi,$$

$$0 \le \gamma \le 2\pi,\ 0 \le \varphi \le \pi.$$

Для первых производных по ξ произвольной функции $\psi(\xi_1, \xi_2,..., \xi_n)$, кроме традиционных обозначений, будет использоваться также запись $\partial_i \psi(\xi_1, \xi_2,..., \xi_n)$. Для левой части уравнения (1) будет использоваться обозначение $L_a u$.

Мы будем придерживаться имеющейся традиции, когда $C^p(G)$ означает множество функций, имеющих все частные производные до порядка p включительно, непрерывные в области G, а множество таких функций, имеющих непрерывные продолжения всех производных на границу области, обозначается как $C^p(\overline{G})$. Будем предполагать, что $f(x,t) \in C^2(\overline{G^+})$.

Рассмотрим функцию $F(x,t)$, равную $f(x,t)$ для $x_3 \geq 0$ и $-f(x,t)$ для $x_3 < 0$. Сужение функции $F(x,t)$ на замыкание множества G^+ обозначим через $F^+(x,t)$, а на множество G^- — через $F^-(x,t)$. Отметим, что функция $F(x,t)$ оказывается, вообще говоря, разрывной при $x_3 = 0$.

Будем искать обобщенное решение задачи (1), (2) в следующем классе функций:

$$u(x,t) \in C^1\left(\overline{G^+}\right), u(x,t) \in C^2\left(\overline{G_1^+}\right),$$
$$u(x,t) \in C^2\left(\overline{G_2^+}\right),$$

т. е. функция $u(x,t)$ является решением уравнения (1) в классическом смысле в областях G_1^+, G_2^+, а на границе между ними оказывается непрерывной вместе со своими первыми производными. Отметим, что непрерывность вторых производных на гиперплоскости $x_3 = at$ не предполагается.

Дифференциальные свойства интеграла типа Дюамеля

Рассмотрим следующий интеграл:

$$U(x,t) = \frac{1}{4\pi}\int_0^t \tau \int_\Omega F\left(x + a\tau\omega,\ t-\tau\right) d\omega d\tau. \quad (3)$$

Справедливо следующее утверждение.

Лемма 1. *Функция, определенная равенством (3), принадлежит следующим классам:*

$$U(x,t) \in C^1\left(\overline{G^+}\right), U(x,t) \in C^2\left(\overline{G_1^+}\right),$$
$$U(x,t) \in C^2\left(\overline{G_2^+}\right).$$

Д о к а з а т е л ь с т в о. Пусть $(x,t) \in G_1^+$. Сначала вычислим производные функции $U(x,t)$ по переменной t. Представим $U(x,t)$ в виде суммы

$$U(x,t) = I_1(x,t) + I_2(x,t) + I_3(x,t),$$

$$I_1(x,t) = \\ = \frac{1}{4\pi}\int_0^{x_3/a} \tau \int_\Omega F^+\left(x + a\tau\omega,\ t-\tau\right) d\omega d\tau, \quad (4)$$

$$I_2(x,t) = \frac{1}{4\pi}\int_{x_3/a}^{t} \tau \int_0^{2\pi} \int_0^{\alpha(x_3,\tau)} F^+\big(x + \\ + a\tau\omega(\gamma,\varphi),\ t-\tau\big)\sin\varphi d\varphi d\gamma d\tau, \quad (5)$$

$$I_3(x,t) = \frac{1}{4\pi}\int_{x_3/a}^{t} \tau \int_0^{2\pi} \int_{\alpha(x_3,\tau)}^{\pi} F^-\big(x + \\ + a\tau\omega(\gamma,\varphi),\ t-\tau\big)\sin\varphi d\varphi d\gamma d\tau, \quad (6)$$

где $\alpha(x_3,\tau) = \arccos(-x_3 / a\tau)$.

Продифференцируем по t каждое из выражений (4) – (6):

$$\frac{\partial I_1(x,t)}{\partial t} = \\ = \frac{1}{4\pi}\int_0^{x_3/a} \tau \int_\Omega \partial_4 F^+\big(x + a\tau\omega,\ t- \\ -\tau\big) d\omega d\tau, \quad (7)$$

$$\frac{\partial^2 I_1(x,t)}{\partial t^2} = \\ = \frac{1}{4\pi}\int_0^{x_3/a} \tau \int_\Omega \partial_4\partial_4 F^+\big(x + a\tau\omega,\ t- \\ -\tau\big) d\omega d\tau, \quad (8)$$

$$\frac{\partial I_2(x,t)}{\partial t}=$$

$$=\frac{t}{4\pi}\int_0^{2\pi}\int_0^{\alpha(x_3,t)} F^+\left(x+a\tau\omega(\gamma,\varphi),0\right)\times$$

$$\times\sin\varphi d\varphi d\gamma+ \qquad (9)$$

$$+\frac{1}{4\pi}\int_{x_3/a}^{t}\tau\int_0^{2\pi}\int_0^{\alpha(x_3,t)}\partial_4 F^+\left(x+a\tau\omega(\gamma,\varphi),\,t-\tau\right)\times$$

$$\times\sin\varphi d\varphi d\gamma d\tau,$$

$$\frac{\partial^2 I_2(x,t)}{\partial t^2}=$$

$$=\frac{1}{4\pi}\int_0^{2\pi}\int_0^{\alpha(x_3,t)} F^+\left(x+a\tau\omega(\gamma,\varphi),0\right)\times$$

$$\times\sin\varphi d\varphi d\gamma+$$

$$+\frac{t}{4\pi}\int_0^{2\pi} F^+\left(x+at\omega\left(\gamma,\alpha\left(x_3,t\right)\right),0\right)\times$$

$$\times\sin\alpha\left(x_3,t\right)\frac{\partial}{\partial t}\alpha\left(x_3,t\right)d\gamma+$$

$$+\frac{t}{4\pi}\int_0^{2\pi}\int_0^{\alpha(x_3,t)}\operatorname{grad}_x F^+\left(x+at\omega(\gamma,\varphi),0\right)\times$$

$$\times a\omega(\gamma,\varphi)\sin\varphi d\varphi d\gamma+ \qquad (10)$$

$$+\frac{t}{4\pi}\int_0^{2\pi}\int_0^{\alpha(x_3,t)}\partial_4 F^+\left(x+at\omega(\gamma,\varphi),0\right)\times$$

$$\times\sin\varphi d\varphi d\gamma+$$

$$+\frac{1}{4\pi}\int_{x_3/a}^{t}\tau\int_0^{2\pi}\int_0^{\alpha(x_3,t)}\partial_4\partial_4 F^+\left(x+a\tau\omega(\gamma,\varphi),t-\tau\right)\times$$

$$\times\sin\varphi d\varphi d\gamma d\tau,$$

$$\frac{\partial I_3(x,t)}{\partial t}=$$

$$=\frac{t}{4\pi}\int_0^{2\pi}\int_{\alpha(x_3,t)}^{\pi} F^-\left(x+at\omega(\gamma,\varphi),0\right)\times$$

$$\times\sin\varphi\, d\varphi d\gamma+ \qquad (11)$$

$$+\frac{1}{4\pi}\int_{x_3/a}^{t}\tau\int_0^{2\pi}\int_{\alpha(x_3,t)}^{\pi}\partial_4 F^-\left(x+a\tau\omega(\gamma,\varphi),t-\tau\right)\times$$

$$\times\sin\varphi\, d\varphi d\gamma d\tau,$$

$$\frac{\partial^2 I_3(x,t)}{\partial t^2}=$$

$$=\frac{1}{4\pi}\int_0^{2\pi}\int_{\alpha(x_3,t)}^{\pi} F^-\left(x+at\omega(\gamma,\varphi),0\right)\times$$

$$\times\sin\varphi d\varphi d\gamma+$$

$$+\frac{t}{4\pi}\int_0^{2\pi} F^-\left(x+at\omega\left(\gamma,\alpha\left(x_3,t\right),0\right)\sin\alpha\left(x_3,t\right)\right)\times$$

$$\times\left(-\frac{\partial}{\partial t}\alpha\left(x_3,t\right)\right)d\gamma+ \qquad (12)$$

$$+\frac{t}{4\pi}\int_0^{2\pi}\int_{\alpha(x_3,t)}^{\pi}\operatorname{grad}_x F^-\left(x+at\omega(\gamma,\varphi),0\right)\times$$

$$\times a\omega(\gamma,\varphi)\sin\varphi d\varphi d\gamma+$$

$$+\frac{t}{4\pi}\int_0^{2\pi}\int_{\alpha(x_3,t)}^{\pi}\partial_4 F^-\left(x+at\omega(\gamma,\varphi),0\right)\times$$

$$\times\sin\varphi d\varphi d\gamma+$$

$$+\frac{1}{4\pi}\int_{x_3/a}^{t}\tau\int_0^{2\pi}\int_{\alpha(x_3,t)}^{\pi}\partial_4\partial_4 F^-\left(x+a\tau\omega(\gamma,\varphi),t-\tau\right)\times$$

$$\times\sin\varphi d\varphi d\gamma d\tau.$$

Теперь рассмотрим случай $(x,t)\in G_2^+(x_3>at)$:

$$\frac{\partial U(x,t)}{\partial t}=$$

$$=\frac{t}{4\pi}\int_\Omega F^+\left(x+at\omega,0\right)d\omega+ \qquad (13)$$

$$+\frac{1}{4\pi}\int_0^t\tau\int_\Omega\partial_4 F^+\left(x+at\omega,\,t-\tau\right)d\omega d\tau,$$

$$\frac{\partial^2 U(x,t)}{\partial t^2}=$$

$$=\frac{1}{4\pi}\int_\Omega F^+\left(x+at\omega,0\right)d\omega+$$

$$+\frac{t}{4\pi}\int_\Omega\operatorname{grad}_x F^+\left(x+at\omega,0\right)a\omega d\omega+$$

$$+\frac{t}{4\pi}\int_\Omega\partial_4 F^+\left(x+at\omega,0\right)d\omega+ \qquad (14)$$

$$+\frac{1}{4\pi}\int_0^t\tau\int_\Omega\partial_4\partial_4 F^+\left(x+at\omega,t-\tau\right)d\omega d\tau.$$

Складывая правые части равенств (7), (9), (11) и устремляя $t \to x_3/a$, убеждаемся, что предельное значение указанной суммы совпадает с предельным значением правой части равенства (13). Тем самым показано, что частная производная $\partial U(x,t)/\partial t$ непрерывна при $at = x_3$.

Более того, используя указанные равенства, нетрудно убедиться в непрерывности $\partial_4 U(x,t)$ для $(x,t) \in \overline{G}^+$.

Для анализа второй частной производной от функции $U(x,t)$ по t используем равенства (8), (10), (12), из которых следует непрерывность $\partial_4\partial_4 U(x,t)$ для $(x,t) \in \overline{G}^+$.

Далее рассмотрим производные от $U(x,t)$ по x_3. Пусть $(x,t) \in G_1^+$. Тогда

$$\frac{\partial I_1(x,t)}{\partial x_3} = \frac{x_3}{4\pi a^2}\int_\Omega F^+\left(x + x_3\omega, t - x_3/a\right)d\omega + \frac{1}{4\pi}\int_0^{x_3/a}\tau\int_\Omega \partial_3 F^+\left(x + x_3\omega, t-\tau\right)d\omega d\tau, \tag{15}$$

$$\frac{\partial^2 I_1(x,t)}{\partial x_3^2} = \frac{1}{4\pi a^2}\int_\Omega F^+\left(x + x_3\omega, t - x_3/a\right)d\omega + \frac{x_3}{4\pi a^2}\int_\Omega \operatorname{grad}F^+\left(x + x_3\omega, t - x_3/a\right)\eta d\omega + \frac{x_3}{4\pi a^2}\int_\Omega \partial_3 F^+\left(x + x_3\omega, t - x_3/a\right)d\omega + \frac{1}{4\pi}\int_0^{x_3/a}\tau\int_\Omega \partial_3\partial_3 F^+\left(x + a\tau\omega, t-\tau\right)d\omega d\tau, \tag{16}$$

где $\eta = (\omega_1, \omega_2, 1 + \omega_3, -1/a)$;

$$\frac{\partial I_2(x,t)}{\partial x_3} = -\frac{x_3}{4\pi a^2}\int_\Omega F^+\left(x + x_3\omega, t - x_3/a\right)d\omega + \frac{1}{4\pi a}\int_{x_3/a}^{t}\int_0^{2\pi} F^+\left(x + a\tau\omega\left(\gamma, \alpha\left(x_3,\tau\right)\right), t - \tau\right)d\gamma d\tau + \frac{1}{4\pi}\int_{x_3/a}^{t}\tau\int_0^{2\pi}\int_0^{\alpha(x_3,\tau)}\partial_3 F^+\left(x + a\tau\omega(\gamma,\varphi), t-\tau\right)d\varphi d\gamma d\tau, \tag{17}$$

$$\frac{\partial^2 I_2(x,t)}{\partial x_3^2} = -\frac{1}{4\pi a^2}\int_\Omega F^+\left(x + x_3\omega, t - x_3/a\right)d\omega - \frac{x_3}{4\pi a^2}\int_\Omega \operatorname{grad}F^+\left(x + x_3\omega, t - x_3/a\right)\eta d\omega - \frac{1}{4\pi a^2}\times$$
$$\times\int_0^{2\pi} F^+\left(x + x_3\omega\left(\gamma, \alpha\left(x_3, x_3/a\right)\right), t - x_3/a\right)d\gamma - \frac{1}{4\pi a}\times \tag{18}$$
$$\times\int_{x_3/a}^{t}\int_0^{2\pi}\frac{\partial}{\partial x_3}F^+\left(x + a\tau\omega\left(\gamma,\alpha\left(x_3,\tau\right)\right), t-\tau\right)d\gamma d\tau - \frac{x_3}{4\pi a^2}\times$$
$$\times\int_\Omega \partial_3 F^+\left(x + x_3\omega, t - x_3/a\right)d\omega + \frac{1}{4\pi}\int_{x_3/a}^{t}\tau\int_0^{2\pi}\partial_3 F^+\left(x + a\tau\omega\left(\gamma,\alpha\left(x_3,\tau\right)\right), t-\tau\right)\frac{\partial\alpha\left(x_3,\tau\right)}{\partial x_3}d\gamma d\tau + \frac{1}{4\pi}\times$$
$$\times\int_{x_3/a}^{t}\tau\int_0^{2\pi}\int_0^{\alpha(x_3,\tau)}\partial_3\partial_3 F^+\left(x + a\tau\omega(\gamma,\varphi), t-\tau\right)d\varphi d\gamma d\tau,$$

$$\frac{\partial I_3(x,t)}{\partial x_3} =$$

$$= -\frac{1}{4\pi a}\int\limits_{x_3/a}^{t}\int\limits_{0}^{2\pi} F^-\Big(x + a\tau\omega\big(\gamma,\alpha(x_3,\tau)\big), t - \tau\Big) d\gamma d\tau + \frac{1}{4\pi}\times \tag{19}$$
$$\times\int\limits_{x_3/a}^{t}\int\limits_{0}^{2\pi}\int\limits_{\alpha(x_3,\tau)}^{\pi} \partial_3 F^-\big(x + a\tau\omega(\gamma,\varphi), t - \tau\big) d\varphi d\gamma d\tau,$$

$$\frac{\partial^2 I_3(x,t)}{\partial x_3^2} =$$
$$= \frac{1}{4\pi a^2}\int\limits_{0}^{2\pi} F^-\Big(x + x_3\omega\big(\gamma,\alpha(x_3,x_3/a)\big), t - \tau\Big) d\gamma - \frac{1}{4\pi a}\times \tag{20}$$
$$\times\int\limits_{x_3/a}^{t}\int\limits_{0}^{2\pi}\frac{\partial}{\partial x_3} F^-\Big(x + a\tau\omega\big(\gamma,\alpha(x_3,\tau)\big), t - \tau\Big) d\gamma d\tau + \frac{1}{4\pi}\times$$
$$\times\int\limits_{x_3/a}^{t}\int\limits_{0}^{2\pi}\int\limits_{\alpha(x_3,\tau)}^{\pi} \partial_3\partial_3 F^-\big(x + a\tau\omega(\gamma,\varphi), t - \tau\big) d\varphi d\gamma d\tau.$$

При вычислении производных от $U(x,t)$ по x_3 мы неоднократно использовали равенство $\alpha(x_3, x_3 / a) = \pi$, что позволило немного упростить полученные выражения.

Для $(x,t) \in G_2^+$ вычисления производных по x_3 выполняются просто:

$$\frac{\partial U(x,t)}{\partial x_3} = \frac{1}{4\pi}\int\limits_0^t \tau \int\limits_\Omega \partial_3 F^+(x + a\tau\omega, t - \tau) d\omega d\tau, \tag{21}$$

$$\frac{\partial^2 U(x,t)}{\partial x_3^2} = \frac{1}{4\pi}\int\limits_0^t \tau \int\limits_\Omega \partial_3\partial_3 F^+(x + a\tau\omega, t - \tau) d\omega d\tau. \tag{22}$$

Сложим правые части равенств (15), (17), (19) и найдем предел указанной суммы при $t \to x_3/a$. Несмотря на громоздкие выражения, искомый предел оказывается равным правой части равенства (21), что доказывает непрерывность первой производной $U(x,t)$ по x_3 на множестве G^+. Это свойство, в сочетании с ранее доказанной непрерывностью производной $U(x,t)$ по t, позволяет сделать вывод: $U(x,t) \in C^1(G^+)$.

Формулы для других производных, содержащих дифференцирование по x_1, x_2, получаются аналогично, но имеют более простой вид. Из этих формул, а также из несложного анализа правых частей равенств (18), (20), (22) следует утверждение о принадлежности $U(x,t)$ классам $C^2(G_1^+)$, $C^2(G_2^+)$.

Тем самым лемма 1 доказана.

Лемма 2. *Вторая частная производная функции $U(x,t)$ по t может иметь разрыв первого рода при $x_3 = at$. При этом ее скачок дается формулой*

$$\lim_{t\to x_3/a+0}\partial_4\partial_4 U(x,t) - \lim_{t\to x_3/a-0}\partial_4\partial_4 U(x,t) = -f(x_1,x_2,0,0). \tag{23}$$

Д о к а з а т е л ь с т в о. Рассмотрим сумму правых частей формул (8), (10) и (12). Предел полученного выражения существенно сокращается благодаря равенствам

$$t = x_3/a,\ \alpha(x_3, x_3/a) = \pi,$$
$$\omega\big(\gamma,\alpha(x_3,x_3/a)\big) = (0,0,-1).$$

При этом часть интегралов обращаются в нуль, а другие упрощаются. Вычитая из полученной таким образом суммы правую часть равенства (14) при $t = x_3/a$, приходим к формуле (23).

Лемма 2 доказана.

Основные результаты

Теорема. *Существует единственное обобщенное решение задачи (1), (2).*

Д о к а з а т е л ь с т в о. Доопределим функцию $F(x,t)$ нулем для $t < 0$. Тогда интеграл в правой части равенства (3), рассматриваемый для всех $x \in R^3$, является сверткой функции $F(x,t)$ с фундаментальным решением волнового уравнения (1). Поэтому он является решением этого уравнения в классе обобщенных функций (распределений по Шварцу) (см. работу [1, С. 224]). Также отметим, что этот интеграл является регулярной обобщенной функцией и, благодаря доказанным свойствам функции $U(x,t)$ (лемма 1), имеет классические непрерывные производные до второго порядка в областях G_1^+, G_2^+. Отсюда следует выполнение равенства

$$L_a\left(U\left(x,t\right)\right) = f\left(x,t\right)$$

при $(x,t) \in G_1^+$, $(x,t) \in G_2^+$.

Теперь обратимся к равенствам (2). Краевое условие $U(x_1,x_2,0,t)$ следует из нечетности функции $F(x,t)$ по x_3 и симметрии области интегрирования при $x_3 = 0$. Поскольку функция $U(x,t)$ в области G_2^+ совпадает с классическим интегралом Дюамеля, то и начальные условия в равенствах (2) выполняются. Эти выводы, в совокупности со свойствами, указанными в лемме 1, позволяют считать функцию $U(x,t)$ искомым решением задачи. Для согласования обозначений остается положить $U(x,t) = u(x,t)$.

Единственность решения следует из единственности решения задачи Коши для уравнения (1) в классе обобщенных функций.

Теорема доказана.

Далее продемонстрируем метод спуска, традиционно используемый в задаче Коши. Пусть теперь правая часть уравнения (1) не зависит, например, от переменной x_1. Тогда формула (3) приобретает вид

$$u\left(x_2,x_3,t\right) = \\ = \frac{1}{4\pi}\int_0^t \tau \int_\Omega F\left(x_2 + a\tau\omega_2, x_3 + a\tau\omega_3, t - \right. \\ \left. -\tau\right) d\omega d\tau. \quad (24)$$

Поскольку равенство (24) является частным случаем формулы (3), то все выводы для задачи (1), (2) верны и в этом случае, детали которого нетрудно вывести из приведенного исследования. Этот метод спуска можно бы продолжить и далее и при этом получить уже известную формулу для полуограниченной струны.

Формула (23) позволяет поставить обратную задачу и предложить алгоритм ее решения. Пусть для некоторого фиксированного вектора

$$\left(x_1,x_2,x_3\right), x_3 > 0$$

задана функция

$$u\left(x_1,x_2,x_3,t\right) = h\left(t\right).$$

Требуется найти коэффициент a. Предполагая условие

$$f\left(x_1,x_2,0,0\right) \neq 0$$

выполненным, рассмотрим значение второй производной $h''\left(t\right)$.

Из леммы 2 следует, что $h''\left(t\right)$ имеет единственный разрыв в некоторой точке $t_0 = ax_3$, откуда получается значение искомой величины $a = t_0 / x_3$.

Заключение

Как уже было отмечено, настоящая работа направлена на обобщение классических результатов, которые, в силу ряда ограничений, не всегда адекватны прикладным задачам. Соответственно, основной целью наших исследований является расширение возможности практического внедрения теоретических выводов.

В статье рассмотрен случай трех пространственных переменных. Однако благодаря методу спуска, достигнутые результаты оказываются применимыми для описания процесса колебаний не только трехмерных объемов, но и двумерных областей типа мембраны.

Полученная нами формула — это новый результат, так как классический интеграл Дюамеля для классического решения волнового уравнения использовался ранее только для задачи Коши и применялся только для гладких функций класса C^2.

Кроме этого, наличие явной формулы позволило поставить и решить обратную задачу определения коэффициента волнового уравнения, характеризующего колеблющуюся среду.

Проведенное исследование также преследовало цель возможного применения достигнутых результатов для других обобщений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Владимиров В.С.** Уравнения математической физики. М.: Наука, 1981. 512 с.

2. **Ильин В.А.** О разрешимости смешанных задач для гиперболического и параболического уравнений // Успехи математических наук. 1960. Т. 15. № 2 (92). С. 97–154.

3. **Ладыженская О.А.** Смешанная задача для гиперболического уравнения. М.: Государственное издательство технико-теоретической литературы, 1953. 279 с.

4. **Кириченко С.В., Пулькина Л.С.** Задача с нелокальными начальными данными для одномерного гиперболического уравнения // Известия вузов. Математика. 2014. № 9. С. 17–26.

5. **Моисеев Е.И., Холомеева А.А., Фролов А.А.** Граничное управление смещением процессом колебаний при граничном условии типа торможения за время, меньшее критического // Материалы международной конференции "International Conference on Mathematical Modelling in Applied Sciences "ICMMAS-17". Санкт-Петербургский политехнический университет, 24–28 июля 2017 г. Итоги науки и техники. Сер. Современная математика и ее приложения. Тематические обзоры. 2019. Т. 160. С. 74–84.

6. **Куликовский А.Г., Свешникова Е.И., Чугайнова А.П.** Математические методы изучения разрывных решений нелинейных гиперболических систем уравнений // Лекционные курсы НОЦ. Вып. 16. М.: Изд. Математического института им. В.А. Стеклова РАН, 2010. 122 с.

7. **Филиппов А.Ф.** Дифференциальные уравнения с разрывной правой частью. М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит-ры, 1985. 255 с.

8. **Аниконов Д.С., Ковтанюк А.Е., Прохоров И.В.** Использование уравнения переноса в томографии. М.: «Логос», 2000. 223 с.

9. **Petrova G., Popov B.** Linear transport equations with μ-monotone coefficients // Journal of Mathematical Analysis and Applications. 2001. Vol. 260. No. 2. Pp. 307–324.

10. **Bouchut F., Jame F.** One-dimensional transport equations with discontinuous coefficients // Nonlinear Analysis: Theory, Methods and Applications. 1998. Vol. 32. No. 7. Pp. 891–933.

11. **Driscoll T.A., Fornberg B.** Block pseudospectral methods for Maxwell's equations. II: Two-dimensional, discontinuous-coefficient case // SIAM Journal on Scientific Computing. 1999. Vol. 21. No. 3. Pp. 1146–1167.

12. **Дурдиев Д.К.** Обратная задача определения двух коэффициентов в одном интегродифференциальном волновом уравнении // Сибирский журнал индустриальной математики. 2009. Т. 12. № 3 (39). С. 28–40.

13. **Tadmor E.** Local error estimates for discontinuous solutions of nonlinear hyperbolic equations // SIAM Journal on Numerical Analysis. 1991. Vol. 28. No. 4. Pp. 891–906.

14. **Derevtsov E.Yu., Maltseva S.V., Svetov I.E.** Mathematical models and algorithms for reconstruction of singular support of functions and vector fields by tomographic data // Eurasian Journal of Mathematical and Computer Applications. 2015. Vol. 3. No. 4. Pp. 4–44.

15. **Коновалова Д.С.** Локализация линии разрывов правой части дифференциального уравнения // Сибирский журнал индустриальной математики. 2016. Т. 19. № 1 (65). С. 62–72.

16. **Kazantsev S.G.** Singular value decomposition for the cone-beam transform in the ball // Journal of Inverse and Ill-Posed Problems. 2015. Vol. 23. No. 2. Pp. 173–185.

17. **Валитов И.Р., Кожанов А.И.** Обратные

задачи для гиперболических уравнений: случай неизвестных коэффициентов, зависящих от времени // Вестник Новосибирского государственного университета. Сер. Математика, механика, информатика. 2006. Т. 6. № 1. С. 3–18.

18. **Сафиуллова Р.Р.** Обратная задача для гиперболического уравнения второго порядка с неизвестным коэффициентом, зависящим от времени // Вестник Южно-Уральского государственного университета. Сер. Математическое моделирование и программирование. 2013. Т. 6. № 4. С. 73–86.

19. **Аниконов Д.С., Коновалова Д.С.** Прямая и обратная задачи для волнового уравнения с разрывными коэффициентами // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2018. Т. 11. № 2. С. 61–71.

20. **Воронин А.Ф.** Обратная и прямая задачи для уравнения первого рода в свертках на полупрямой // Сибирские электронные математические известия. 2017. Т. 14. С. 1456–1462.

21. **Деревцов Е.Ю.** Об одном обобщении экспоненциального лучевого преобразования в томографии // Сибирский журнал чистой и прикладной математики. 2018. Т. 18. № 4. С. 29–41.

22. **Деревцов Е.Ю., Мальцева С.В., Светов И.Е.** Определение разрывов функции, заданной в области с рефракцией, по ее экспоненциальному лучевому преобразованию // Сибирский журнал индустриальной математики. 2018. Т. 21. № 4 (76). С. 51–74.

23. **Светов И.Е., Полякова А.П., Мальцева С.В.** Метод приближенного обращения для операторов лучевых преобразований, действующих на двумерные симметричные m-тензорные поля // Сибирский журнал индустриальной математики. 2019. Т. 22. № 1. С. 104–115.

Статья поступила в редакцию 21.08.2020, принята к публикации 27.10.2020.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

АНИКОНОВ Дмитрий Сергеевич – *доктор физико-математических наук, заведующий лабораторией Института математики им. С.Л. Соболева СО РАН, г. Новосибирск, Российская Федерация.*

630090, Российская Федерация, г. Новосибирск, пр. Академика Коптюга, 4

anik@math.nsc.ru

КОНОВАЛОВА Дина Сергеевна – *кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Института математики им. С.Л. Соболева СО РАН, г. Новосибирск, Российская Федерация.*

630090, Российская Федерация, г. Новосибирск, пр. Академика Коптюга, 4

dsk@math.nsc.ru

REFERENCES

1. **Vladimirov V.S.,** Equations of mathematical physics, Mir Publishing, Moscow, 1984.

2. **Il'in V.A.,** The solvability of mixed problems for hyperbolic and parabolic equations, Russian Mathematical Surveys. 15 (2) (1960) 85–142.

3. **Ladyzhenskaya O.A.,** Smeshannaya zadacha dlya giperbolicheskogo uravneniya [The mixed problem for hyperbolic equation], Gostekhizdat, Moscow, 1953.

4. **Kirichenko S.V., Pul'kina L.S.,** A problem with nonlocal initial data for one-dimensional hyperbolic equation, Russian Mathematics. 58 (9) (2014) 13–21.

5. **Moiseev E.I., Kholomeyeva A.A., Frolov A.A.,** Boundary displacement control for the oscillation process with boundary conditions of damping type for a time less than critical, Itogi Nauki i Tekhniki, Ser. Sovrem. Mat. Pril., Temat. Obz. 160 (2019) 74 – 84 (in Russian).

6. **Kulikovskii A.G., Sveshnikova E.I., Chu-**

gainova A.P., Mathematical methods for studying discontinuous solutions of nonlinear hyperbolic systems of equations, Lektsionnyye Kursy NOC, Vol. 16, Steklov Mathematical Institute of RAS, Moscow, 2010 (in Russian).

7. **Filippov A.F.,** Differential equations with discontinuous right hand sides, Control systems, Edited by Arscott F.M., Springer Nature, Switzerland AG. (1988).

8. **Anikonov D.S., Kovtanyuk A.E., Prokhorov I.V.,** Transport equation and tomography, VSP (Inverse and Ill-Posed Problems Series), Utrecht, Boston, Kölu, Tokyo, 2002.

9. **Petrova G., Popov B.,** Linear transport equations with μ-monotone coefficients, Journal of Mathematical Analysis and Applications. 2001. 260 (2) (2001) 307–324.

10. **Bouchut F., Jame F.,** One-dimensional transport equations with discontinuous coefficients, Nonlinear Analysis: Theory, Methods and Applications. 32 (7) (1998) 891–933.

11. **Driscoll T.A., Fornberg B.,** Block pseudospectral methods for Maxwell's equations. II: Two-dimensional, discontinuous-coefficient case, SIAM Journal on Scientific Computing. 21 (3) (1999) 1146–1167.

12. **Durdiev D.K.,** Obratnaya zadacha opredeleniya dvukh koeffitsientov v odnom integrodifferetsial'nom volnovom uravneniy [An inverse problem for determining two coefficients in the one integro-differential wave equation], Siberian Journal of Industrial Mathematics. 12 (3) (2009) 28–40 (in Russian).

13. **Tadmor E.,** Local error estimates for discontinuous solutions of nonlinear hyperbolic equations, SIAM Journal on Numerical Analysis. 28 (4) (1991) 891–906.

14. **Derevtsov E.Yu., Maltseva S.V., Svetov I.E.,** Mathematical models and algorithms for reconstruction of singular support of functions and vector fields by tomographic data, Eurasian Journal of Mathematical and Computer Applications. 3 (4) (2015) 4–44.

15. **Konovalova D.S.,** Localization of the discontinuity line of the right-hand side of a differential equation, Journal of Applied and Industrial Mathematics. 10 (1) (2016) 97–105.

16. **Kazantsev S.G.,** Singular value decomposition for the cone-beam transform in the ball, Journal of Inverse and Ill-Posed Problems. 23 (2) (2015) 173–185.

17. **Valitov I.R., Kozhanov A.I.,** Obratnyye zadachi dlya giperbolicheskikh uravneniy: sluchay neizvestnykh koeffitsiyentov, zavisyashchikh ot vremeni [Inverse problems for hyperbolic equations: the case of unknown time coefficients], Bulletin of the Novosibirsk State University, Series "Mathematics, Mechanics, Computer Science". 6 (1) (2006) 3–18.

18. **Safiullova R.R.,** Inverse problem for the second order hyperbolic equation with unknown time dependent coefficient, Bulletin of the South Ural State University. Series "Mathematical Modeling, Programming & Computer Software". 6 (4) (2013) 73–86 (in Russian).

19. **Anikonov D.S., Konovalova D.S.,** Direct and inverse problems for a wave equation with discontinuous coefficients, St. Petersburg Polytechnical University Journal. Physics and Mathematics. 11 (2) (2018) 61–71.

20. **Voronin A.F.,** Inverse and direct problems for the first-kind equation in convolutions on a semidirect, Siberian Electronic Mathematical Reports. 14 (2017) 1456–1462 (in Russian).

21. **Derevtsov E.Y.,** Ob odnom obobshchenii eksponentsialnogo luchevogo preobrazovaniya v tomografii [On a generalization of exponential ray transformation in tomography], Siberian Journal of Pure and Applied Mathematics. 18 (4) (2018) 29–41 (in Russian).

22. **Derevtsov E.Y., Maltseva S.V., Svetov I.E.,** Determination of discontinuities of a function in a domain with refraction from its attenuated ray transform, Journal of Applied and Industrial Mathematics. 12 (4) (2018) 619–641.

23. **Svetov I.E., Polyakova A.P., Maltseva S.V.,** The method of approximate inverse for ray transform operators on two-dimensional symmetric *m*-tensor fields, Journal of Applied and Industrial Mathematics. 13 (1) (2019) 157–167.

Received 21.08.2020, accepted 27.10.2020.

THE AUTHORS

ANIKONOV Dmitry S.
Sobolev Institute of Mathematics
4 Acad. Koptyug Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation
anik@math.nsc.ru

KONOVALOVA Dina S.
Sobolev Institute of Mathematics
4 Acad. Koptyug Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation
dsk@math.nsc.ru

DOI: 10.18721/JPM.14108
УДК 537.533.2, 598.9

НИЗКОПОРОГОВАЯ ПОЛЕВАЯ ЭМИССИЯ ЭЛЕКТРОНОВ ТОНКИМИ ПЛЕНКАМИ МЕТАЛЛОВ

И.С. Бизяев, П.Г. Габдуллин, Н.М. Гнучев, А.В. Архипов

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Санкт-Петербург, Российская Федерация

В работе экспериментально исследованы эмиссионные свойства тонких пленок нескольких металлов (Mo, Ni, W, Ti и Zr), нанесенных на кремниевые подложки методом магнетронного распыления. При эффективной толщине 6 – 10 нм, многие образцы пленок показали способность эмитировать электроны при комнатной температуре в поле с макроскопической напряженностью порядка единиц В/мкм. Оптимизированная процедура термополевой обработки позволяла дополнительно активировать их эмиссионные свойства, снижая эмиссионный порог в несколько раз. Была выявлена корреляция эмиссионных свойств пленок с топографией их поверхности, определяемой методом атомно-силовой микроскопии (АСМ). При этом выраженной корреляции эмиссионной способности с прочими характеристиками покрытий (в том числе с видом металла и типом проводимости подложки) обнаружено не было. Полученные экспериментальные результаты свидетельствуют в пользу двухтемпературной («горячеэлектронной») модели эмиссионного механизма для изученных покрытий.

Ключевые слова: полевая эмиссия, тонкая пленка, атомно-силовая микроскопия, эмиссия горячих электронов

Ссылка при цитировании: Бизяев И.С., Габдуллин П.Г., Гнучев Н.М., Архипов А.В. Низкопороговая полевая эмиссия электронов тонкими пленками металлов // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 111–127. DOI: 10.18721/JPM.14108

LOW-FIELD ELECTRON EMISSION FROM THIN FILMS OF METALS

I.S. Bizyaev, P.G. Gabdullin, N.M. Gnuchev, A.V. Arkhipov

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,
St. Petersburg, Russian Federation

The paper presents an experimental study of the low-threshold field electron emission from thin films of metals (Mo, W, Zr, Ni and Ti) deposited on silicon substrates by magnetron sputtering. Several samples of such films having effective thickness in the range 6 – 10 nm were capable of room-temperature electron emission in electric field with macroscopic intensity as low as a few kV/mm. Optimized thermofield treatment procedure further improved their emission properties reducing the threshold field by several times. AFM study revealed a correlation between film’s emission properties and their surface topography. At the same time, no equally pronounced correlation of the emissivity with other characteristics of coatings (including the sort of the metal and the silicon substrate conductivity type) was detected. Results of the study witness in favor of two-temperature (or hot-electron) emission mechanism for the investigated coatings.

Keywords: field emission, thin film, atomic force microscopy, hot-electron emission

Citation: Bizyaev I.S., Gabdullin P.G., Gnuchev N.M., Arkhipov A.V., Low-field electron emission from thin films of metals, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 111–127. DOI: 10.18721/JPM.14108

Введение

Одним из привлекательных приложений наноструктурированных материалов является их применение в составе холодных (ненакаливаемых) катодов электронных устройств. В настоящее время на практике в них чаще всего используются металлические или кремниевые острия либо углеродные нанотрубки и сходные с ними волокна [1 – 5]. Однако многие исследователи считают перспективными и холодные эмиттеры электронов, не имеющие острий, – с относительно гладкой эмитирующей границей [3 – 9] – даже несмотря на то, что практически конкурентоспособных систем такого типа пока не было предложено.

В одном из экспериментальных видов холодных катодов, изучавшихся начиная с 1960-х гг. [10 – 13], в качестве основного элемента была использована наноостровковая металлическая (или углеродная) пленка на диэлектрической подложке. Ток в пленке между нанесенными поверх нее электродами протекает в результате туннельного переноса электронов через зазоры, разделяющие островки. При этом наблюдаются электролюминесценция и эмиссия электронов в вакуум. Механизм такой эмиссии не был окончательно установлен, но, согласно наиболее популярной модели [13 – 15], он включает в себя следующие процессы:

эмитируются горячие электроны,

разогревается электронная подсистема островков под действием инжектируемого в них тока,

поддерживается высокая электронная температура как следствие нарушения энергообмена между электронами и решеткой, характерного для наноразмерных объектов.

Справедливость данной модели подтверждалась наблюдением эмиссии и при использовании иных (помимо токового) способов накачки энергии электронов в островках – в частности, при воздействии инфракрасного (ИК) излучения [13, 16].

Другой вид экспериментальных образцов холодных эмиттеров изучался в работах [17 – 19]. Было показано, что углеродные наноостровковые пленки на кремниевых подложках способны эмитировать электроны при комнатной температуре в достаточно слабых электростатических полях (макроскопическая напряженность составляла порядка 1 В/мкм) и без каких-либо дополнительных воздействий, таких как возбуждение поверхностным током. При этом на поверхности не обнаруживалось ни участков с низкой работой выхода, ни высокоаспектных элементов топографии (острий, волокон и т. п.).

Для описания эмиссионной способности таких пленок нами была предложена модель [20, 21], во многом сходная с описанной выше моделью горячих электронов. Предположение о замедленной релаксации горячих носителей в наноостровках в этой модели также использовалось, но оно обосновывалось особенностями электронной структуры sp^2-гибридизированного углерода [22, 23].

Первичной целью данной работы была экспериментальная проверка справедливости последнего предположения. Требовалось установить, действительно ли холодная эмиссия электронов в электрическом поле макроскопической напряженности порядка 1 В/мкм (без иных внешних воздействий, таких как протекание поверхностного тока или ИК-облучение) возможна лишь для углеродных островковых пленок или же она будет наблюдаться также и для металлических пленок аналогичной структуры.

Дальнейшие исследования были направлены на определение закономерностей обнаруженной низкопороговой эмиссии электронов тонкими металлическими пленками.

Методика эксперимента

Образцы металлических пленок наносились на естественно окисленные подложки из легированного кремния методом магнетронного напыления с использованием установки HEX производства Mantis Deposition (Великобритания). Подложки предварительно очищались ультразвуковой обработкой в растворе ацетона и подвергались дополнительной термической очистке при температуре около 150 °C после установки на предметный столик ростовой камеры и откачки системы до давления 10^{-5} Торр. Перед напылением покрытия очищалась также и мишень магнетрона, для чего подложки закрывались специальным экраном в течение первых пяти минут работы распылителя. Возможности установки позволяли проводить процесс напыления металлов при давлении остаточных газов порядка 10^{-6} Торр, регулировать скорость напыления (от 0,13 до 1,0 Å/с) и температуру подложек (от комнатной до 250 °C). Мониторинг эффективной («номинальной») толщины покрытия производился методом кварцевых микровесов.

Эмиссионные свойства образцов испытывались в экспериментальном приборе, собранном на базе вакуумной установки ТСН-2, при давлении остаточных газов порядка 10^{-9} Торр. Прибор содержал шесть идентичных секций и позволял проводить параллельное тестирование соответствующего числа образцов. Каждый из них закреплялся на отдельном предметном столике, оснащенном подогревателем прямого накала, благодаря которому температура образца могла регулироваться в диапазоне от комнатной до 600°C. Электрическое поле создавалось в планарном зазоре шириной 0,6 мм между образцом и торцом цилиндрического анода, диаметр которого составлял 6 мм.

После установки в прибор партии образцов и предварительной откачки осуществлялось их обезгаживание прогревом до 150°C. Далее могла проводиться процедура термополевого активирования эмиссионных свойств покрытий, разработанная ранее в ходе экспериментов с наноуглеродными эмиттерами [24]. Для металлических пленок параметры процедуры были оптимизированы методом подбора.

При измерении эмиссионных характеристик между образцом и анодом прикладывалось медленно меняющееся напряжение вплоть до максимальной величины в 4,5 кВ от управляемого высоковольтного источника. Временные интервалы его нарастания и спада (линейных во времени) составляли 35 с, что соответствует частоте 12 мГц. Напряжение $U(t)$ и ток эмиссии $I(t)$ фиксировались цифровым осциллографом и использовались для получения эмиссионных характеристик $I(U)$.

Образцы покрытий, прошедшие эмиссионные тесты, изучались с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ) NanoDST Pacific Nanotechnology (США) в так называемом полуконтактном (CloseContact) режиме. Это позволяло в ходе оперативных измерений в невакуумных условиях определять «истинную» топографию поверхности с абсолютными значениями нормальной координаты при минимальном влиянии адсорбированных слоев атмосферных газов и воды на результаты измерений. Тем не менее, для удаления избыточно плотного слоя летучих веществ некоторые образцы перед проведением АСМ-измерений были прогреты на воздухе до температуры выше 100 °C в течение 2 ч. Помимо АСМ, в ряде случаев использовался сканирующий электронный микроскоп (СЭМ) MIAIA3 Tescan (Чехия) с возможностью ЭДС-анализа элементного состава поверхности.

Ограничение набора экспериментальных методов, использованных в ходе описываемых первичных экспериментов, позволило провести оперативное тестирование большого числа образцов, которые различались материалом металлических покрытий, их толщиной, параметрами процесса напыления и типом подложки.

Экспериментальные результаты

Эмиссионные свойства образцов и возможность их активирования. Опыты с образцами металлических покрытий на кремниевых подложках подтвердили способность части таких образцов эмитировать электроны в электрическом поле с макроскопической напряженностью E (определяется как отношение приложенного напряжения к ширине полевого зазора) порядка единиц В/мкм. Измеренные эмиссионные характеристики (рис. 1) имели, как правило, экспоненциальный вид в «прямых» координатах $I(U)$ и хорошо аппроксимировались линейной зависимостью в координатах Фаулера – Нордгейма

$$\ln(I/U^2) = f(1/U),$$

что принято считать подтверждением полевой (туннельной) природы эмиссионного механизма.

Как и для изучавшихся ранее наноуглеродных материалов [24], эмиссионная способность пленок металлов могла быть активирована применением следующей процедуры термополевой обработки.

К образцу прикладывалось электрическое поле небольшой напряженности (около 1 В/мкм), и производился нагрев образца со скоростью примерно 5 °С/мин до появления эмиссионного тока величиной 100 нА; либо, в отсутствие поля, до достижения температуры 600°С (точка появления тока термоэмиссии).

Для многих покрытий автоэмиссионный ток появлялся и начинал нарастать со временем уже при температуре примерно 300°С. По достижении величины 100 нА, напряжен-

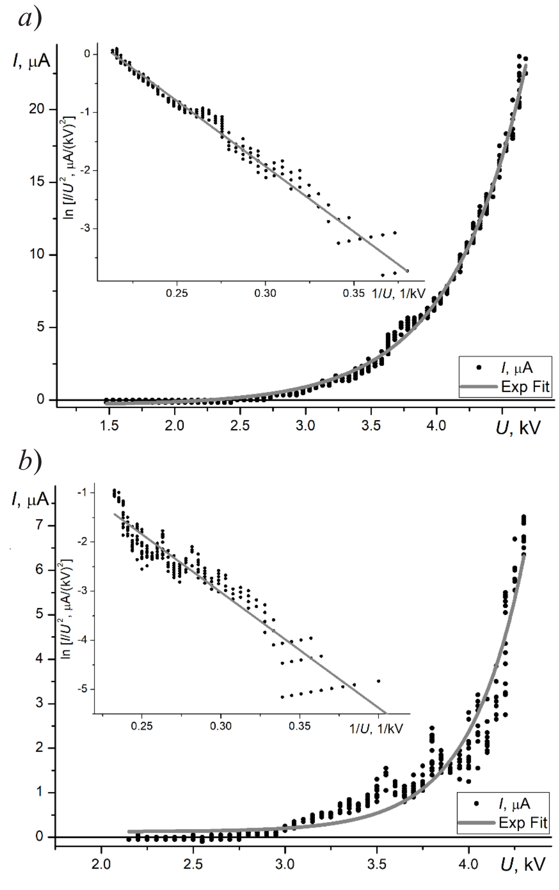


Рис. 1. Эмиссионные характеристики образцов пленок Mo (*a*) и Zr (*b*) эффективной толщиной 6 нм. На вставках приведены те же зависимости в координатах Фаулера – Нордгейма

Таблица

Основные параметры изученных пленок и их эмиссионные свойства

№ опыта	Материал покрытия (d_{nom}, нм)	Материал подложки	Скорость напыления, Å/c	E_{th}, В/мкм	I_{max}, мкА
1	Mo (6)	КДБ 10	0,2	3,0	2,2
	Zr (6)		0,5	4,3	8,0
	Ni (6)		1,0	5,0	2,6
	W (6)		1,0	не определены	
	Ti (6)		0,2	нет эмиссии	
2	Mo (6)	Si + 200 нм оксида	1,0	нет эмиссии	
	Mo (8)				
3	Mo (4)	КДБ 10	0,2	4,8	0,05
	Mo (6)			3,0	2,20
	Mo (4)	КЭФ 7.5		4,0	0,15
	Mo (6)			6,4	0,03
4	Mo (2)	КДБ 10	0,2	нет эмиссии	
	Mo (4)			не определены	
	Mo (6)			3,0	2,2
	Mo (8)		1,0	3,2	12
	Mo (10)			4,0	25
	Mo (20)			нет эмиссии	
5	Mo (6) № 1	КДБ 10	0,13	3,2	4,16
	Mo (6) № 2		1,0	4,2	23,70
	Mo (6) № 3*			3,6	1,53

О б о з н а ч е н и я: d_{nom} – номинальная толщина металлической пленки; E_{th} – пороговая напряженность электрического поля (определялась по моменту появления тока, равного около 100 нА), I_{max} – максимальный ток эмиссии.

П р и м е ч а н и я. Температура подложки составляла 100 °С; исключение составлял образец № 3* в опыте 5, для которого она была равна 150°С.

ность поля постепенно уменьшали, стабилизируя ток на указанном значении; нагрев образца прекращали, и, после некоторой паузы, начинали медленное его охлаждение до комнатной температуры, по-прежнему поддерживая величину тока эмиссии на уровне 100 нА (для этого специально подбирали напряжение, подаваемое на полевой зазор).

Благодаря применению описанной процедуры к образцам с наилучшими эмиссионными свойствами, уровень напряжения, который требовался для отбора тока заданной величины, удавалось снизить в несколько раз. Попытки упростить процедуру, например активировать образец без приложения электрического поля, а только температурным воздействием, либо отключать поле в процессе охлаждения активируемых образцов, оказались безуспешными. Их результатом неизменно становилась утрата эмиссионной способности исследуемыми структурами.

В таблице представлены в сжатой форме результаты экспериментов по изучению влияния различных параметров тонких металлических пленок на их эмиссионную способность. Более полному их описанию посвящены последующие разделы статьи.

Эмиссионная способность образцов (лучших из соответствующей серии) характеризуется в таблице двумя величинами. Одна из них – пороговое значение макроскопической напряженности поля E_{th}, которое определялось по моменту появления тока, равного примерно 100 нА. Другая – максимальное значение тока $I_{\max}$, которое удавалось отбирать из области образца, расположенной напротив анода (его диаметр равен 6 мм).

Сравнение эмиссионных свойств тонких пленок разных металлов. Для выяснения влияния материала покрытия на его эмиссионные свойства были изготовлены образцы пленок пяти разных металлов: молибдена, циркония, никеля, вольфрама и титана, имеющих одинаковую номинальную толщину d_{nom} (дана в скобках в таблице). Сводка результатов проведенного сопоставления также представлена в таблице.

Наилучшую эмиссионную способность проявили образцы покрытий из молибдена Mo (см. рис. 1,*a*). Вследствие этого, большая часть экспериментов в рамках данной работы проводилась именно с молибденовыми пленками. Практически все образцы Mo-покрытий с номинальной толщиной в диапазоне 6 – 10 нм могли эмитировать электроны при напряженности поля менее 10 В/мкм. На рис. 2,*a* приведено типичное АСМ-изображение Mo-покрытия эффективной толщиной 6 нм. По его виду можно заключить, что покрытие неоднородное, при этом средний латеральный размер возвышенных участков («островков») близок к 20 нм при их высоте 1 – 2 нм. Плотность расположения островков составляет около 500 мкм$^{-2}$.

Пленки циркония характеризовались сходной топографией поверхности. На типичном для них АСМ-изображении (рис. 2,*b*) выделяются зерна со средним поперечным размером примерно 30 нм и высотой до 2 нм; их количество составляет около 400 на мкм^2. Эмиссионная способность таких пленок проявлялась даже до процедуры термополевого активирования, а после нее дополнительно улучшалась (см. рис. 1,*b* и таблицу).

По признаку топографии поверхности, пленки никеля заметно отличалась от пленок металлов, описанных выше. Присутствовавшие на АСМ-изображениях неоднородности имели существенно больший размер и вытянутую форму. Длина наблюдающихся «возвышенностей» для типичного случая (см. рис. 2,*c*) достигает 60 – 100 нм при высоте до 5 – 8 нм, причем эти возвышенности, насколько можно судить по изображениям, соединены в общую сеть. Пленки никеля отличались от пленок молибдена и циркония и по эмиссионным свойствам, причем в худшую сторону. После активирования они проявляли некоторую эмиссионную способность, но ток автоэмиссии был крайне нестабильным. По достижении величины 2 – 4 мкА ток необратимо прекращался; вероятно, происходило разрушение небольшого числа имевшихся на поверхности эмиссионных центров.

Типичное АСМ-изображение поверхности вольфрамовой пленки (рис. 2,*d*) аналогично по структуре изображениям молибденовой и циркониевой. Однако топографические особенности здесь несколько крупнее: их поперечный размер в среднем равен 80 нм, а высота – 3 нм. Эмиссионная способность пленок вольфрама была худшей, чем у рассмотренных ранее металлов. При нагреве до 500 °C в процессе активирования эмиссионный ток 100 нА мог быть получен при напряжении 3,5 кВ (на эмиссионном зазоре, равном 0,6 мм). Однако после остывания образца пороговые значения напряжения лежали выше 4 кВ, что делало регистрацию эмиссионных зависимостей технически невозможной.

При анализе приведенных экспериментальных данных следует учитывать, что АСМ-изображения не позволяют однозначно установить, являются ли наблюдаемые неоднородности топографии изолированными островками металла. Результаты СЭМ-ЭДС-картирования, проведенного для нескольких образцов, свидетельствуют о том, что металлические покрытия номинальной толщиной 6 нм (и более) на участках, не

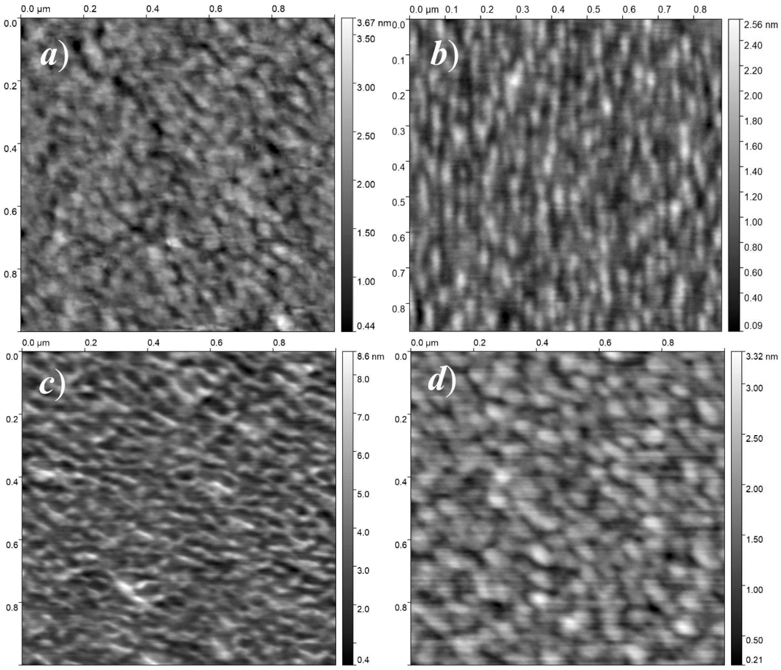


Рис. 2. АСМ-изображения поверхности образцов металлических покрытий
из Mo (*a*), Zr (*b*), Ni (*c*), W(*d*) с эффективной толщиной 6 нм

поврежденных при эмиссионном тестировании действием электрических разрядов (они расположены вне активно эмитировавших областей), являлись сплошными. Следовательно, полученные АСМ-изображения во многих случаях выявили лишь локальную неоднородность толщины пленок, но не их разделение на изолированные островки, чего можно было ожидать ввиду имевшихся данных для углеродных покрытий с аналогичными эмиссионными свойствами [17 – 19]. Тем не менее, сопоставление эмиссионной способности металлических покрытий с параметрами их АСМ-изображений позволило выявить показательную корреляцию (подтвержденную и результатами, представленными в последующих разделах): наилучшей эмиссионной способностью обладали образцы с наименьшим масштабом топографической неоднородности поверхности.

Результаты эксперимента с пленками титана заслуживают отдельного обсуждения. Их отличало полное отсутствие эмиссионной способности; процедура термополевого активирования также не дала нужного результата. Изображение поверхности одной из изготовленных стандартным образом пленок этого металла приведено на рис. 3,*а*. Металл образует здесь изолированно расположенные островки большого размера (по сравнению с зернами на изображениях других покрытый, приведенных на рис. 2), приблизительно до 1 мкм. Островки имеют характерный вид дендритных структур, «растущих» от центрального выступа значительной (десятки нанометров) высоты. Островки нанометровых размеров здесь отсутствуют – этот факт был специально проверен.

Такая морфология титановой пленки представляется необычной, поскольку для этого металла в принципе характерна высокая адгезия к кремнию и его диоксиду, что, в частности, позволяет использовать слои титана в качестве буферных при нанесении пленок других металлов (см., например, работу [25]). Вместе с тем известно, что структура титановых пленок существенно зависит от способа и условий их нанесения [26]. Рост дендритоподобных («фрактальных») кластеров, сходных по форме и размерам с обнаруженными на наших образцах титановых пленок (см. рис. 3), наблюдался и был теоре-

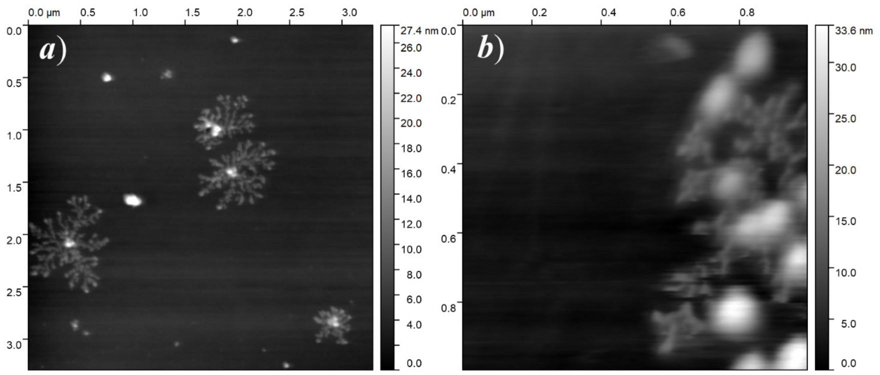


Рис. 3. АСМ-изображения дендритных структур на поверхностях двух образцов покрытий: Ti (*a*) и Mo, наносившегося на пластину Si с толстым слоем (около 200 нм) оксида (*b*)

тически описан, например, в работе [27]. Для реализации предложенного там механизма формирования дендритов требуется, чтобы тонкий поверхностный слой подложки был непроводящим (обычно эту роль выполняет слой оксида), а осаждаемый материал приходил на нее в заряженном состоянии. В этом случае поле накопленного поверхностного заряда препятствует осаждению нового материала на всех участках, кроме окрестностей дефектов непроводящего слоя, позволяющих заряду «стекать» в объем подложки. Именно здесь начинается рост покрытия, распространяющегося по поверхности в виде совокупности дендритных структур, электрически связанных с подложкой через дефекты в оксидном слое.

Для условий нанесения титанового покрытия в данной работе оба критерия реализуемости описанного выше сценария могли быть выполнены:

на использовавшихся кремниевых подложках сохранялся естественный слой оксида;

при реализации метода магнетронного распыления значительная часть материала приходит к подложке в заряженном состоянии [28].

Вопрос о том, какие именно особенности использованных нами подложек, мишеней или режима распыления привели к формированию титанового покрытия в виде совокупности дендритоподобных островков, требует дальнейшего изучения. С позиций основной цели данного исследования, наиболее важным представляется вывод об отсутствии способности к низкопороговой холодной эмиссии электронов у титанового покрытия, состоящего из крупных кластеров-дендритов.

Для проверки предположения о влиянии электрической зарядки поверхности на морфологию получаемых пленок был поставлен специальный эксперимент (см. опыт № 2 в таблице). Пленки молибдена были нанесены с использованием одного из стандартных режимов напылительной установки на кремниевые подложки с собственной проводимостью и искусственно окисленной поверхностью. Толщина слоя оксида составляла 200 нм, что позволяло ожидать усиления эффектов, связанных с зарядкой поверхности, по сравнению со случаем естественно окисленных подложек. И действительно, некоторые участки таких покрытий по морфологии существенно отличалась от Mo-пленок на кремнии с естественным слоем окисла (см. рис. 2,*a*) и имели сходство с покрытиями Ti (см. рис. 3,*a*): на поверхности формировались дендритные структуры, «привязанные» к линейным и точечным дефектам (см. рис. 3,*b*). Такие образцы не проявили эмиссионной способности ни до, ни в ходе процедуры термополевого активирования. Помимо морфологических особенностей покрытий, отсутствие эмиссионной активности можно связать и с затрудненным транспортом носителей к эмиссионным центрам через толстый слой оксида.

Зависимость эмиссионных свойств покрытий от типа проводимости подложки. Природа горячеэлектронного механизма эмиссии электронов предполагает возможность существенного влияния свойств подложки на эмиссионную способность пленок. Для экспериментальной оценки степени и характера такого влияния, две пленки молибдена, различающиеся значениями эффективной толщины, выращивались на естественно окисленных подложках из кремния *p*-типа марки КДБ 10 и из кремния *n*-типа КЭФ 7.5.

Сводные данные об эмиссионной способности таких образцов приведены в таблице (опыт № 3). В целом можно отметить несколько более высокую эмиссионную способность пленок, выращенных на подложках с дырочной проводимостью. Кроме того, образцы покрытий на *n*-кремнии, спустя непродолжительное время (14 сут) после процедуры активации, потеряли свои эмиссионные свойства. Наилучшими параметрами обладал образец Mo-покрытия на подложке КДБ 10 с дырочной проводимостью, имевший эффективную толщину 6 нм. Для него оказались характерными не только высокая эмиссионная способность, но и необходимый отклик на процедуру термополевого активирования. Ввиду этих свойств, именно подложки с дырочной проводимостью использовались в большинстве экспериментов данной работы.

Вместе с тем, отмеченное различие в эмиссионной способности образцов покрытий на разных подложках могло определяться не самим типом их проводимости, а морфологией создававшихся пленок. АСМ-изображения поверхности образцов молибденовых покрытий одинаковой эффективной толщины 6 нм на подложках разного типа представлены на рис. 4. Различия в топографии пленок достаточно заметны: зерна покрытия на *p*-Si подложке имеют меньшие латеральные размеры (30 – 50 нм). Структура пленок, имеющих поверхность с такой топографией, оказалась, по нашему заключению, оптимальной по признаку их эмиссионной способности.

Зависимость эмиссионных свойств от толщины покрытий. Для прояснения связи эмиссионных свойств покрытий с их толщиной, были изготовлены образцы пленок молибдена номинальной толщиной от 2 до 20 нм на кремниевых подложках КДБ 10 с дырочной проводимостью. Сводка полученных для них наилучших эмиссионных параметров представлена в таблице (опыт № 4).

Для покрытий толщиной 2 и 4 нм устойчивой низкопороговой эмиссии получить не удалось. В отличие от них, покрытия с номинальной толщиной 6 нм демонстрировали низкий порог включения и стабильный эмиссионный ток. Однако максимальные значения отбираемого тока для них были невелики, что может говорить о небольшом числе активировавшихся эмиссионных центров. Для пленок 8 нм были характерны несколько более высокие пороговые значения электрического поля, но максимальные величины отбираемого тока $I_{\max}$ для них выросли более чем в 5 раз, по сравнению с пленками 6 нм. Пленки с номинальной толщиной 10 нм имели еще более высокий порог включения, но и максимальные значения отбираемых токов для них оказались рекордными для такого типа структур, изученных нами. Образец с эффективной толщиной пленки 20 нм вообще не обладал эмиссионными свойствами; процедура его термополевого активирования также не принесла требуемых результатов.

АСМ-изображения поверхности Mo-покрытий разной толщины на подложках одного типа (КДБ 10) приведены на рис. 4,*a* и 5 (для покрытия толщиной 6 нм). Закономерный характер изменения топографии поверхности образцов с увеличением количества нанесенного вещества иллюстрируется также графиком на рис. 6, где представлена зависимость от эффективной толщины покрытий для «нормированной шероховатости» изображений, рассчитанной средствами пакета Gwyddion.

На рис. 5,*a*, представляющем покрытие наименьшей толщины (2 нм), на площадке

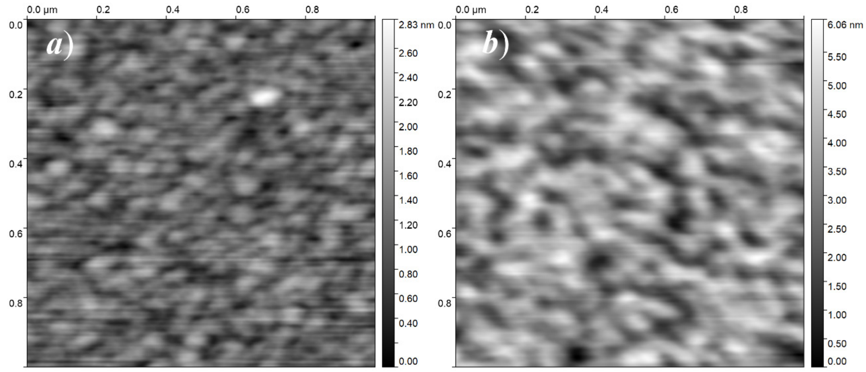


Рис. 4. АСМ-изображения поверхности пленок Мо на подложках КДБ 10 (*a*) и КЭФ 7.5 (*b*).
Эффективная толщина пленок – 6 нм

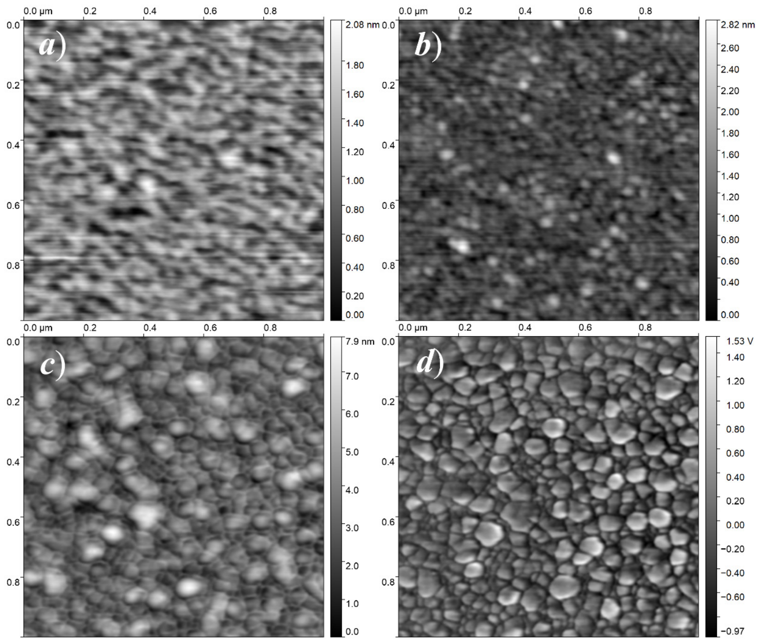


Рис. 5. АСМ-изображения топографии поверхности пленок Мо с разной эффективной толщиной, нм: 2 (*a*), 8 (*b*), 10 (*c*); *d* – «фазовое» изображение участка поверхности (*c*).
Пленки выращены на подложке КДБ 10

1 мкм^2 обнаруживается лишь несколько выделяющихся особенностей (зерен) с характерным поперечным размером до 30 – 50 нм и высотой до 1 – 2 нм. Приблизительно таковы размеры островков, которые, в соответствии с эмиссионными моделями, использованными в работах [13 – 15, 20, 21], связывались с центрами низкопороговой полевой эмиссии. На поверхностях покрытий толщиной 6 нм и 8 нм (см. рис. 4,*a* и 5,*b* соответственно) зерна тех же размеров присутствуют в значительно большем количестве, что может определять высокую эмиссионную способность таких пленок. В то же время АСМ-изображения пленки 10 нм (см. топографию поверхности образца на рис. 5,*c* и соответствующее «фазовое» распределение на рис. 5,*d*) показывают покрытие, составленное соприкасающимися доменами несколько большего поперечного размера и высоты. Впрочем, зерна размера, определенного нами в качестве «оптимального», здесь также присутствуют. Меньшее

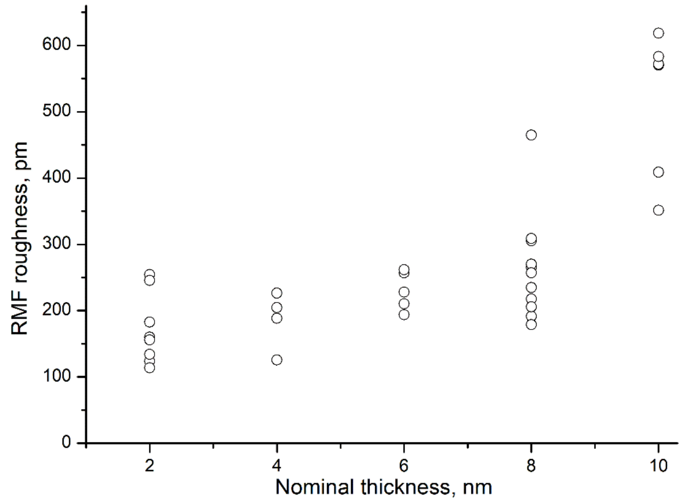


Рис. 6. Зависимости среднеквадратичного параметра шероховатости поверхности пленок Mo (по данным АСМ-изображений) от значений их эффективной толщины.
Рассчитано средствами пакета Gwyddion

их число можно объяснить более высоким полевым порогом эмиссии для таких покрытий, а большая стабильность и устойчивость эмиссии может определяться как раз наличием несколько более крупных островков. При дальнейшем росте толщины Mo-покрытия (образец 20 нм) кристаллиты, по-видимому, формировали устойчивую многослойную структуру, и пленка утрачивала эмиссионную способность.

Зависимость эмиссионных свойств от параметров процесса нанесения пленок. Изложенные выше экспериментальные результаты свидетельствуют о связи эмиссионных свойств покрытий с их морфологией. Известно, что морфология покрытий может изменяться при варьировании условий их нанесения. Поэтому в ходе данной работы сопоставлялись покрытия, различавшиеся лишь особенностями технологии их выращивания. Для сравнения были выбраны пленки молибдена эффективной толщиной 6 нм на кремниевых подложках с дырочной проводимостью. Параметры процесса изготовления трех таких образцов приведены в таблице (опыт № 5). Топография поверхности полученных пленок показана на СЭМ-изображениях (рис. 7).

На поверхности образца покрытия № 1 (см. рис. 7,*a*), сформированного при температуре 100°C и наименьшей скорости роста (0,13 Å/с), присутствовали зерна с типичным поперечным размером 20 нм. Их плотность можно оценить как равную примерно 500 мкм$^{-2}$. На изображении образца № 2 (см. рис. 7,*b*), сформированного при той же температуре, но при большей скорости нанесения, зерна имеют больший средний размер: 30 – 40 нм; их количество на единицу площади составило примерно 300 мкм$^{-2}$. Образец № 3 (см. рис. 7,*c*) был сформирован при повышенной температуре подложки (150°C) и высокой скорости роста пленки (1 Å/с). Средний размер зерен здесь оказался наименьшим (примерно 15 – 20 нм) при широком распределении по размерам. Концентрация зерен составляла приблизительно 700 мкм$^{-2}$.

Таким образом, очевидно, что наблюдается различие морфологии покрытий, при том что разновидность зерен, предположительно ассоциируемая с центрами низкопороговой эмиссии, присутствовала на поверхности во всех случаях.

В соответствии с этим, все три образца обладали способностью к низковольтной эмиссии электронов при заметном количественном различии эмиссионных параметров (см.

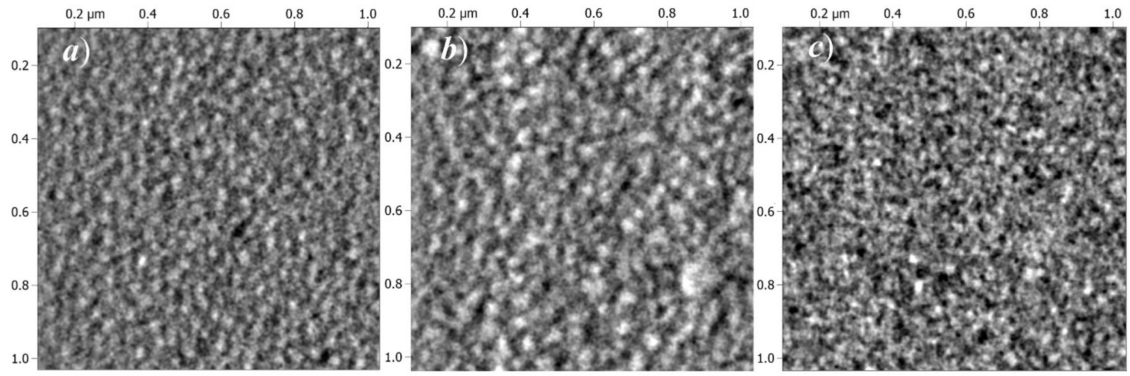


Рис. 7. СЭМ-изображения (детектор вторичных электронов) для образцов № 1 (*a*), № 2 (*b*) и № 3 (*c*), изготовленных в различных условиях (см. опыт № 5 в таблице и описание в тексте)

опыт № 5 в табл.). Корреляция топографии поверхности образцов с их эмиссионной способностью соответствовала отмеченным ранее тенденциям.

Образец № 1 с наименьшим пространственным масштабом неоднородностей характеризовался самым низким порогом эмиссии.

Пороговое поле для образца № 2, с самыми крупными зернами, было самым высоким, но наивысшей оказалась и максимальная величина отбираемого тока I_{max} (вольтамперная характеристика эмиссии приведена на рис. 1,*a*).

Образец № 3 продемонстрировал самую низкую величину допустимого тока эмиссии и промежуточные значения порогового поля.

Обсуждение результатов и выводы

Основным результатом представленной работы можно считать сам факт обнаружения низковольтной эмиссии электронов тонкими пленками металлов, сформированными на окисленном кремнии.

Установлено наличие корреляции эмиссионной способности пленки с ее морфологией (насколько о ней можно судить по АСМ-данным). При этом влияние иных факторов, а именно вида металла и типа проводимости подложки, оказалось более слабым.

В проведенных экспериментах была подтверждена эффективность для металлических покрытий термополевого активирования автоэмиссионной способности, предложенной ранее для углеродных пленок [24]. Указанное активирование во многом аналогично процедуре «электроформовки», необходимой (по данным обзора [13] и упоминаемых там работ) для наблюдения эмиссии электронов из металлических пленок при протекании по ним поверхностного тока. Физическое содержание этого процесса предположительно состоит в миграции атомов металла, приводящей к формированию изолированных островков размером до 100 нм, разделенных промежутками, на которых при появлении латеральной разности потенциалов концентрируется электрическое поле. При протекании электрического тока носители заряда преодолевают промежутки между островками путем туннелирования, что создает благоприятные условия для формирования популяции горячих электронов, которые могут быть эмитированы в вакуум. Эффект усиливается благодаря подавлению электрон-фононного взаимодействия в наноразмерных островках [13 – 15, 20, 21]. На начальных этапах предложенной процедуры термополевого активировании повышенная температура ускоряет поверхностную миграцию атомов и способствует формированию островков. Из литературы известно, что тонкие сплошные металлические пленки, нанесенные на диэлектрические подложки при низкой температуре, приобретают островковую структуру в результате нагрева до 300 – 600°С [29]. В представленных экспериментах для инициации процесса активирования эмиссионных свойств большинства покрытий требовался их нагрев до температуры из этого же диапазона. После появления эмиссионного тока, формированию оптимальной структуры покрытия могут способствовать дополнительные факторы, вызываемые его протеканием, а именно локальный нагрев и ионная бомбардировка поверхности; ранее было показано [30, 31], что облучение потоками ионов также способствует трансформации тонких сплошных металлических пленок в островковые (деветинг, *англ.* dewetting). Возможность формирования участков покрытия (эмиссионных центров) со структурой, оптимальной по признакам эффективности разогрева электронной подсистемы островков и эмиссии электронов в вакуум, должна определяться, прежде всего, толщиной металлической пленки и ее изначальной морфологией – размером и концентрацией уже имеющихся в ее составе кристаллитов. Именно это и наблюдалось в проведенных экспериментах.

Помимо прочего, изложенная выше гипотеза о механизме активирования эмиссионной способности изучавшихся покрытий объясняет и небольшие величины полученных эмиссионных токов, которые не превышали десятков микроампер при токоотборе с площади примерно 0,3 см^2. Если действие факторов, связанных с протеканием эмиссионного тока, вызывает повышение эмиссионной способности локальной области покрытия, то создается положительная обратная связь между эмиссионным током и эмиссионной способностью, которая должна приводить к быстрому разрушению большинства эмиссионных центров. (И действительно, на СЭМ-изображениях (рис. 8) поверхности образцов, прошедших эмиссионные тесты, зачастую наблюдалось большое число кратеров, которые можно отождествить с разрушенными центрами эмиссии, даже если при тестировании не регистрировалось пробоев полевого зазора).

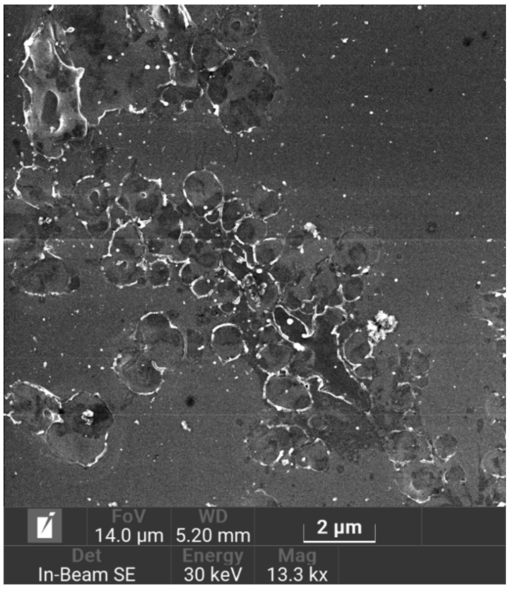


Рис. 8. СЭМ-изображение поверхности образца покрытия Mo толщиной 10 нм после эмиссионных тестов

Из-за того, что формирующиеся центры эмиссии постоянно активируются вплоть до саморазрушения, время жизни большинства из них оказывается небольшим. Это ограничивает число одновременно функционирующих эмиссионных центров и среднюю величину плотности отбираемого тока. Возможно, перспективы достижения высоких значений средней плотности эмиссионного тока пленочных холодных эмиттеров следует связать с нахождением способа управления локальными эмиссионными токами – например, введением систем микроэлектродов или резистивных балластных слоев.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Елецкий А.В.** Холодные полевые эмиттеры на основе углеродных нанотрубок // УФН. 2010. Т. 180. № 9. С. 897–930.

2. **Егоров Н.В., Шешин Е.П.** Автоэлектронная эмиссия. Принципы и приборы. М.: Интеллект, 2011. 704 с.

3. **Егоров Н.В., Шешин Е.П.** Современное состояние автоэмиссионной электроники

// Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2017. № 3. С. 5–15.

4. **Giubileo F., Di Bartolomeo A., Iemmo L., Luongo G., Urban F.** Field emission from carbon nanostructures // Applied Sciences. 2018. Vol. 8. No. 4. P. 526.

5. **Fursey G.N.** Field emission in vacuum microelectronics. New York: Kluwer Academic–Plenum Publishers, 2005, 205 p.

6. **Фурсей Г.Н., Поляков М.А., Баграев Н.Т., Закиров И.И., Нащекин А.В., Бочаров В.Н.** Низкопороговая полевая эмиссия из углеродных структур // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2019. № 9. С. 28–39.

7. **Kleshch V.I., Smolnikova E.A., Orekhov A.S., Kalvas T., Tarvainen O., Kauppinen J., Nuottajarvi A., Koivisto H., Janhunen P., Obraztsov A.N.** Nano-graphite cold cathodes for electric solar wind sail // Carbon. 2015. Vol. 81. January. Pp. 132–136.

8. **Haque A., Narayan J.** Electron field emission from Q-carbon // Diamond and Related Materials. 2018. Vol. 86. June. Pp. 71–78.

9. **Давидович М.В., Яфаров Р.К.** Импульсные и статические автоэмиссионные ВАХ углеродных нанокластерных структур: эксперимент и его интерпретация // Журнал технической физики. 2019. Т. 89. № 8. С. 1282–1293.

10. **Borzjak P.G., Sarbej O.G., Fedorowitsch R.D.** Neue Erscheinungen in sehr dünnen Metallschichten // Physica Status Solidi. B. 1965. Vol. 8. No. 1. Pp. 55–58.

11. **Nepijko S.A., Kutnyakhov D., Protsenko S.I., Odnodvorets L.V., Schönhense G.** Sensor and microelectronic elements based on nanoscale granular systems // Journal of Nanoparticle Research. 2011. Vol. 13. No. 12. Pp. 6263–6281.

12. **Shen Z., Wang X., Wu S., Tian J.** Numerical analysis of the surface-conduction electron-emitter with a new configuration // Modern Physics Letters. B. 2016. Vol. 30. No. 10. P. 1650137.

13. **Fedorovich R.D., Naumovets A.G., Tomchuk P.M.** Electron and light emission from island metal films and generation of hot electrons in nanoparticles // Physics Reports. 2000. Vol. 328. No. 2–3. Pp. 73–179.

14. **Bilotsky Y., Tomchuk P.M.** Peculiarity of electron-phonon energy exchange in metal nanoparticles and thin films // Surface Science. 2008. Vol. 602. No. 1. Pp. 383–390.

15. **Tomchuk P., Bilotsky Y.** New peculiarity in the temperature and size dependence of electron-lattice energy exchange in metal nanoparticles // International Journal of Modern Physics. B. 2014. Vol. 28. No. 31. P. 1450220.

16. **Gloskovskii A., Valdaitsev D.A., Cinchetti M., et al.** Electron emission from films of Ag and Au nanoparticles excited by a femtosecond pump-probe laser // Physical Review. B. 2008. Vol. 77. No. 19. P. 195427.

17. **Архипов А.В., Габдуллин П.Г., Гордеев С.К., Журкин А.М., Квашенкина О.Е.** Фотостимуляция проводимости и электронные свойства автоэмиссионных наноуглеродных покрытий на кремнии // Журнал технической физики. 2016. Т. 86. № 12. С. 135–144.

18. **Andronov A., Budylina E., Shkitun P., Gabdullin P., Gnuchev N., Kvashenkina O., Arkhipov A.** Characterization of thin carbon films capable of low-field electron emission // Journal of Vacuum Science and Technology. B. 2018. Vol. 36. No. 2. P. 02C108.

19. **Gabdullin P., Zhurkin A., Osipov V., Besedina N., Kvashenkina O., Arkhipov A.** Thin carbon films: correlation between morphology and field-emission capability // Diamond and Related Materials. 2020. Vol. 105. May. P. 107805.

20. **Arkhipov A.V., Zhurkin A.M., Kvashenkina O.E., Osipov V.S., Gabdullin P.G.** Electron overheating during field emission from carbon island films due to phonon bottleneck effect // Наносистемы: физика, химия, математика. 2018. Т. 9. № 1. С. 110–113.

21. **Arkhipov A.V., Eidelman E.D., Zhurkin A.M., Osipov V.S., Gabdullin P.G.** Low-field electron emission from carbon cluster films: combined thermoelectric/hot-electron model of the phenomenon // Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures. 2020. Vol. 28. No. 4. Pp. 286–294.

22. **Dubois S.M.-M., Zanolli Z., Declerck X., Charlier J.-C.** Electronic properties and quantum transport in graphene-based nanostructures // The European Physical Journal. B. 2009. Vol. 72. No. 1. Pp. 1–24.

23. **Варламов А.А., Кавокин А.В., Лукьянчук И.А., Шарапов С.Г.** Аномальные термоэлектрические и термомагнитные свойства графена // Успехи физических наук. 2012. Т. 182. № 11. С. 1229–1234.

24. **Бондаренко В.Б., Габдуллин П.Г., Гнучев Н.М., Давыдов С.Н., Кораблёв В.В., Кравчик А.Е., Соколов В.В.** Эмиссионные характеристики порошков из нанопористого углерода // Журнал технической физики. 2004. Т. 74. № 10. С. 113–116.

25. **Thomsen L.B., Nielsen G., Vendelbo S.B., Johansson M., Hansen O., Chorkendorff I.** Electron emission from ultralarge area metal-oxide-semiconductor electron emitters // Journal of Vacuum Science & Technology. B. 2009. Vol. 27. No. 2. Pp. 562–567.

26. **Arshi N., Lu J., Lee C.G., Yoon J.H., Koo B.H., Ahmed F.** Thickness effect on properties of titanium film deposited by d.c. magnetron sputtering and electron beam evaporation techniques // Bulletin of Materials Science. 2013. Vol. 36. No. 5. Pp. 807–812.

27. **Mishin M.V., Zamotin K.Y., Protopopova V.S., Alexandrov S.E.** Atmospheric pressure PECVD nanoparticles: Mechanism of nanoparticle self-organisation into micron sized fractal clusters on a solid surface // Physical Chemistry, Chemical Physics. 2015. Vol. 17. No. 11. Pp. 7138–7148.

28. **Каштанов П.В., Смирнов Б.М., Хиплер Р.** Магнетронная плазма и нанотехнология // Успехи физических наук. 2007. Т. 177. № 5. С. 473–510.

29. **Niekiel F., Schweizer P., Kraschewski S.M., Butz B., Spiecker E.** The process of solid-state dewetting of Au thin films studied by in situ scanning transmission electron microscopy // Acta Materialia. 2015. Vol. 90. 15 May. Pp. 118–132.

30. **Lo Savio R., Repetto L., Guida P., Angeli E., Firpo G., Volpe A., Ierardi V., Valbusa U.** Control of the micrometric scale morphology of silicon nanowires through ion irradiation-induced metal dewetting // Solid State Communications. 2016. Vol. 240. August. Pp. 41–45.

31. **Тужилкин М.С., Беспалова П.Г., Мишин М.В., Колесников И.Е., Карабешкин К.В., Карасев П.А., Титов А.И.** Формирование наночастиц Au и особенности травления подложки Si после облучения атомарными и молекулярными ионами // Физика и техника полупроводников. 2020. Т. 54. № 1. С. 90–96.

Статья поступила в редакцию 14.10.2020, принята к публикации 24.11.2020.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

БИЗЯЕВ Иван Сергеевич – *аспирант, научный сотрудник лаборатории «Самоорганизующиеся высокотемпературные наноструктуры» Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
ivanbiziaev@yandex.com

ГАБДУЛЛИН Павел Гарифович – *кандидат физико-математических наук, доцент Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
gabdullin_pg@spbstu.ru

ГНУЧЕВ Николай Михайлович – *доктор физико-математических наук, профессор Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
nmg@rphf.spbstu.ru

АРХИПОВ Александр Викторович – *доктор физико-математических наук, доцент Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

arkhipov@rphf.spbstu.ru

REFERENCES

1. **Eletskii A.V.,** Carbon nanotube-based electron field emitters, Physics–Uspekhi. 53 (9) (2010) 863–892.

2. **Egorov N., Sheshin E.,** Field emission cathode-based devices and equipment. In: Field Emission Electronics. Springer Series in Advanced Microelectronics, Vol. 60. Springer, Cham, 2017.

3. **Egorov N.V., Sheshin E.P.,** On the current state of field-emission electronics, J. Surf. Invest.: X-ray, Synchrotron Neutron Tech. 11 (2) (2017) 285–294.

4. **Giubileo F., Di Bartolomeo A., Iemmo L., et al.,** Field emission from carbon nanostructures, Appl. Sci. 8 (4) (2018) 526.

5. **Fursey G.N.,** Field emission in vacuum microelectronics, Kluwer Academic–Plenum Publishers, New York, 2005.

6. **Fursey G.N., Polyakov M.A., Bagraev N.T., et al.,** Low-threshold field emission from carbon structures, J. Surf. Invest.: X-ray, Synchrotron Neutron Tech. 13 (5) (2019) 814–824.

7. **Kleshch V.I., Smolnikova E.A., Orekhov A.S., et al.,** Nano-graphite cold cathodes for electric solar wind sail, Carbon. 81 (January) (2015) 132–136.

8. **Haque A., Narayan J.,** Electron field emission from Q-carbon, Diam. Relat. Mater. 86 (June) (2018) 71–78.

9. **Davidovich M.V., Yafarov R.K.,** Pulsed and static field emission VAC of carbon nanocluster structures: experiment and its interpretation, Tech. Phys. 64 (8) (2019) 1210–1220.

10. **Borzjak P.G., Sarbej O.G., Fedorowitsch R.D.,** Neue Erscheinungen in sehr dünnen Metallschichten, Phys. Status Solidi, B. 8 (1) (1965) 55–58.

11. **Nepijko S.A., Kutnyakhov D., Protsenko S.I., et al.,** Sensor and microelectronic elements based on nanoscale granular systems, J. Nanopart. Res. 13 (12) (2011) 6263–6281.

12. **Shen Z., Wang X., Wu S., Tian J.,** Numerical analysis of the surface-conduction electron-emitter with a new configuration, Mod. Phys. Lett. B. 30 (10) (2016) 1650137.

13. **Fedorovich R.D., Naumovets A.G., Tomchuk P.M.,** Electron and light emission from island metal films and generation of hot electrons in nanoparticles, Phys. Rep. 328 (2–3) (2000) 73–179.

14. **Bilotsky Y., Tomchuk P.M.,** Peculiarity of electron-phonon energy exchange in metal nanoparticles and thin films, Surf. Sci. 602 (1) (2008) 383–390.

15. **Tomchuk P., Bilotsky Y.,** New peculiarity in the temperature and size dependence of electron-lattice energy exchange in metal nanoparticles, Int. J. Mod. Phys. B. 28 (31) (2014) 1450220.

16. **Gloskovskii A., Valdaitsev D.A., Cinchetti M., et al.,** Electron emission from films of Ag and Au nanoparticles excited by a femtosecond pump-probe laser, Phys. Rev. B. 77 (19) (2008) 195427.

17. **Arkhipov A.V., Gabdullin P.G., Gordeev S.K., et al.,** Photostimulation of conductivity and electronic properties of field-emission nanocarbon coatings on silicon, Tech. Phys. 62 (1) (2017) 127–136.

18. **Andronov A., Budylina E., Shkitun P., et al.,** Characterization of thin carbon films capable of low-field electron emission, J. Vac. Sci. Technol. B. 36 (2) (2018) 02C108.

19. **Gabdullin P., Zhurkin A., Osipov V., et al.,** Thin carbon films: correlation between morphology and field-emission capability, Diam. Relat. Mater. 105 (May) (2020) 107805.

20. **Arkhipov A.V., Zhurkin A.M., Kvashenkina O.E., et al.,** Electron overheating during field emission from carbon island films due to phonon bottleneck effect, Nanosystems: Physics, Chemistry, Mathematics. 9 (1) (2018) 110–113.

21. **Arkhipov A.V., Eidelman E.D., Zhurkin A.M., et al.,** Low-field electron emission from carbon cluster films: combined thermoelectric/

hot-electron model of the phenomenon, Fuller. Nanotub. Car. N. 28 (4) (2020) 286–294.

22. **Dubois S.M.-M., Zanolli Z., Declerck X., Charlier J.-C.,** Electronic properties and quantum transport in graphene-based nanostructures, Eur. Phys. J., B. 72 (1) (2009) 1–24.

23. **Varlamov A.A., Kavokin A.V., Luk'yanchuk I.A., Sharapov S.G.,** Anomalous thermoelectric and thermomagnetic properties of graphene, Physics–Uspekhi. 55 (11) (2012) 1146–1151.

24. **Bondarenko V.B., Gabdullin P.G., Gnuchev N.M., et al.,** Emissivity of powders prepared from nanoporous carbon, Tech. Phys. 49 (10) (2004) 1360–1363.

25. **Thomsen L.B., Nielsen G., Vendelbo S.B., et al.,** Electron emission from ultralarge area metal-oxide-semiconductor electron emitters, J. Vac. Sci. Technol. B. 27 (2) (2009) 562–567.

26. **Arshi N., Lu J., Lee C.G., et al.,** Thickness effect on properties of titanium film deposited by d.c. magnetron sputtering and electron beam evaporation techniques, Bull. Mater. Sci. 36 (5) (2013) 807–812.

27. **Mishin M.V., Zamotin K.Y., Protopopova V.S., Alexandrov S.E.,** Atmospheric pressure PECVD nanoparticles: Mechanism of nanoparticle self-organisation into micron sized fractal clusters on a solid surface, Phys. Chem. Chem. Phys. 17 (11) (2015) 7138–7148.

28. **Kashtanov P.V., Smirnov B.M., Hippler R.,** Magnetron plasma and nanotechnology, Physics–Uspekhi. 50 (5) (2007) 455–488.

29. **Niekiel F., Schweizer P., Kraschewski S.M., et al.,** The process of solid-state dewetting of Au thin films studied by in situ scanning transmission electron microscopy, Acta Mater. 90 (15 May) (2015) 118–132.

30. **Lo Savio R., Repetto L., Guida P., et al.,** Control of the micrometric scale morphology of silicon nanowires through ion irradiation-induced metal dewetting, Solid State Commun. 240 (August) (2016) 41–45.

31. **Tuzhilkin M.S., Bespalova P.G., Mishin M.V., et al.,** Formation of Au nanoparticles and features of etching of a Si substrate under irradiation with atomic and molecular ions, Semiconductors. 54 (1) (2020) 137–143.

Received 14.10.2020, accepted 24.11.2020.

THE AUTHORS

BIZYAEV Ivan S.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
ivanbiziaev@yandex.com

GABDULLIN Pavel G.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
gabdullin_pg@spbstu.ru

GNUCHEV Nikolay M.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
nmg@rphf.spbstu.ru

ARKHIPOV Alexander V.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
arkhipov@rphf.spbstu.ru

DOI: 10.18721/JPM.14109
УДК 533.9.01

ТЛЕЮЩИЙ РАЗРЯД СРЕДНЕГО И НИЗКОГО ДАВЛЕНИЯ В ЗАЗОРЕ МЕЖДУ ДВУМЯ ЭКСЦЕНТРИЧНЫМИ ТРУБКАМИ

А.П. Головицкий, Д.Г. Коренюгин

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Санкт-Петербург, Российская Федерация

Рассмотрен положительный столб тлеющего разряда низкого и среднего давления в диффузионном режиме, в зазоре между двумя цилиндрическими диэлектрическими стенками с несовпадающими параллельными осями, причем ток разряда направлен вдоль этих осей. Показано, что электронная температура плазмы такого разряда выше, чем в традиционной цилиндрической геометрии при равных внешних радиусах плазмы, но пространственное распределение плотности плазмы в поперечном сечении разряда может приобретать сильную азимутальную неоднородность.

Ключевые слова: тлеющий разряд, положительный столб, эксцентричная геометрия, электронная температура

Ссылка при цитировании: Головицкий А.П., Коренюгин Д.Г. Тлеющий разряд среднего и низкого давления в зазоре между двумя эксцентричными трубками // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 128–137. DOI: 10.18721/JPM.14109

MODERATE AND LOW PRESSURE GLOW DISCHARGE IN THE GAP BETWEEN TWO ECCENTRIC TUBES

A.P. Golovitskii, D.G. Korenyugin

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,
St. Petersburg, Russian Federation

The positive column of a low and moderate pressure glow discharge located between two dielectric cylindrical walls with noncoincident parallel axes has been considered, the discharge current being aligned along the axes. The electron temperature of such discharge plasma was shown to be higher than the one of traditional cylindrical geometry when the outer plasma radii being equal; but the spatial distribution of plasma density in the discharge cross-section can acquire the strong inhomogeneity in the azimuthal direction.

Keywords: glow discharge, positive column, eccentric geometry, electron temperature

Citation: Golovitskii A.P., Korenyugin D.G., Moderate and low pressure glow discharge in the gap between two eccentric tubes, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 128–137. DOI: 10.18721/JPM.14109

Введение

В работах [1, 2] теоретически изучалась плазма положительного столба тлеющего разряда низкого и среднего давления, когда разряд локализован в зазоре между двумя коаксиально расположенными цилиндрическими диэлектрическими трубками, при этом продольное поле E_z и ток разряда были направлены вдоль общей оси трубок. Авторами было показано, что в такой геометрии разряда имеет место существенное увеличение температуры электронов T_e, по сравнению со случаем цилиндрической геометрии, даже при малом (0,1 и менее) отношении радиуса внутренней стенки к радиусу внешней – ввиду наличия дополнительного канала потерь электронов: их ухода на внутреннюю стенку. Такой результат важен, в частности, для конструирования газоразрядных источников видимого и ультрафиолетового излучений, так как он открывает возможность повышения удельной мощности излучения и его коэффициента полезного действия без заметного снижения объема разряда – только за счет перехода от традиционной цилиндрической к коаксиальной геометрии разряда. Последнее позволяет дать физическое объяснение экспериментальным результатам, полученным в работах [3 – 7].

Результаты работ [1, 2] получены в допущении строго коаксиального, концентричного расположения трубок. Однако такой идеальный случай нелегко реализовать на практике. Погрешности изготовления часто приводят к несоосности, эксцентричности внутренней и внешней трубок, т. е. к нарушению центральной симметрии как поперечного сечения прибора, так и профилей концентраций заряженных частиц.

Данная работа ставила целью выяснить, как количественно влияет эксцентричность сечения разрядного канала на пространственные распределения концентрации электронов плазмы n и на электронную температуру T_e.

В настоящей статье мы ограничимся рассмотрением простого случая плазмы положительного столба тлеющего электроположительного разряда в диффузионном режиме при низком и среднем давлении: когда длина температуропроводности электронов больше внешнего радиуса плазмы, а электронная температура T_e постоянна по сечению прибора. Считаем, что основным механизмом рождения заряженных частиц выступает прямая ионизация электронным ударом, а гибели – амбиполярная диффузия к стенкам.

Методика расчета

На рис. 1 изображено поперечное сечение разрядного канала в эксцентричной геометрии. Начало координат (точка O) выбрано в центре внутреннего круга радиусом R_1. Центр внешней окружности радиусом R (точка O_R) смещен влево от начала координат на расстояние d. Угол φ отсчитывается от оси x. Плазма разряда расположена между окружностями. Ток разряда считается направленным перпендикулярно плоскости xy.

Уравнение для пространственного распределения концентрации электронов положительного столба при вышеназванных условиях имеет следующий вид [8]:

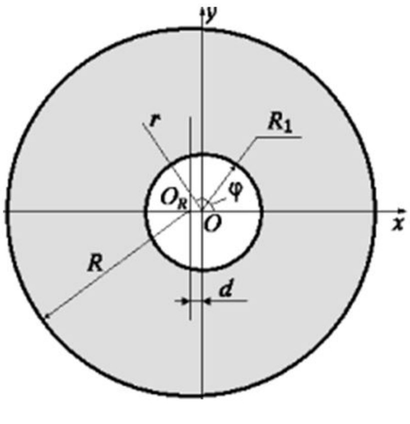


Рис. 1. Поперечное сечение разрядного канала (затушеванная область) в эксцентричной геометрии: x, y и r, φ – декартова и цилиндрическая системы координат; d – эксцентриситет внешней окружности относительно внутренней (их радиусы равны R и R_1 соответственно)

$$D_A \Delta n + \nu_i n = 0,$$

где ν_i, Гц, – частота ионизации; D_A, см²/с, – коэффициент амбиполярной диффузии; ввиду принятого постоянства T_e величины ν_i и D_A не зависят от координат.

Используя приведенную координату $X = r / R$ и обозначая $\xi = R\sqrt{\nu_i / D_A}$, получим:

$$\frac{\partial^2 n}{\partial X^2} + \frac{1}{X}\frac{\partial n}{\partial X} + \frac{1}{X^2}\frac{\partial^2 n}{\partial \varphi^2} + \xi^2 n = 0. \qquad (1)$$

Решение уравнения (1) ищем в виде произведения двух функций:

$$n = \mathrm{P}(r)\Phi(\varphi).$$

Тогда уравнение (1) принимает вид

$$\frac{X^2 \mathrm{P}''}{\mathrm{P}} + \frac{X\mathrm{P}'}{\mathrm{P}} + \xi^2 X^2 = -\frac{\Phi''}{\Phi} = k^2,$$

где k – постоянное число.

Следовательно, $\Phi'' = -k^2\Phi$, или

$$\Phi(\varphi) = C_1^{(k)}\cos(k\varphi) + C_2^{(k)}\sin(k\varphi). \qquad (2)$$

По физическому смыслу, $\Phi(\varphi)$ – четная по φ функция с периодом 2π. Поэтому k может принимать только целые значения: k = 0, 1, 2,..., а $C_2^{(k)} = 0 \; \forall k$.

Функция $\mathrm{P}(r)$ следует выражению

$$\mathrm{P}(r) = B_{k1}\mathrm{J}_k(\xi X) + B_{k2}\mathrm{N}_k(\xi X), \qquad (3)$$

где $\mathrm{J}_k(x)$, $\mathrm{N}_k(x)$ – функции Бесселя и Неймана k-го порядка.

В итоге для общего решения уравнения (1) получим в поперечном сечении разряда выражение

$$n(X,\varphi) = \sum_{k=0}^{\infty}\{C_k \cos(k\varphi) \times \times [\mathrm{J}_k(\xi X) + B_k \mathrm{N}_k(\xi X)]\}, \qquad (4)$$

где вследствие однородности уравнения (1) положено $B_{k1} = 1$, $B_{k2} \equiv B_k$.

Граничные условия на внутренней окружности – нулевые:

$$n(\rho,\varphi) = 0 \; \forall\varphi, \qquad (5)$$

где ρ – приведенный радиус внутренней стенки ($\rho = R_1 / R$); на внешней стенке граничные условия – тоже нулевые:

$$n(X_R,\varphi_R) = 0 \; \forall\varphi_R \in [0, 2\pi), \qquad (6)$$

где X_R – приведенная радиальная координата точки внешней окружности, видимой из начала координат под углом φ_R.

Величины X_R и φ_R связаны соотношением (см. рис. 1):

$$X_R^2 + a^2 - 2X_R a\cos(\pi - \varphi_R) = 1,$$

где $a = d/R$, или

$$X_R = \sqrt{1 - a^2\sin^2\varphi_R} - a\cos\varphi_R. \qquad (7)$$

Угол φ_R, как и φ, отсчитывается от оси x против часовой стрелки, а его вершина лежит в начале координат.

Из выражений (4) и (5) следует, что

$$B_k = -\frac{\mathrm{J}_k(\xi\rho)}{\mathrm{N}_k(\xi\rho)} \; \forall k \in [0, 1, 2, ..., \infty).$$

Тогда

$$n(X,\varphi) = \sum_{k=0}^{\infty} C_k \cos(k\varphi)\,\Omega_k(\xi, X), \qquad (8)$$

где введено обозначение

$$\Omega_k(\xi, X) = \mathrm{J}_k(\xi X) - \frac{\mathrm{J}_k(\xi\rho)}{\mathrm{N}_k(\xi\rho)}\mathrm{N}_k(\xi X).$$

Из граничных условий (6) следует, что

$$\sum_{k=0}^{\infty} C_k \cos(k\varphi_R)\,\Omega_k(\xi, X_R) = 0, \qquad (9)$$

где величины φ_R и X_R связаны соотношением (7).

Выражение (8), при условии нахождения коэффициентов C_k и собственных чисел (СЧ) ξ из формулы (9), представляет собой точное решение задачи (1) для эксцентричного случая. Но если задавать удовлетворение граничных условий (6) во всех точках внешней окружности, то для нахождения коэффициентов C_k потребуется решать систему линейных алгебраических уравнений (9) неограниченного размера.

Но отметим, что при $a \to 0$, когда и величина межстеночного зазора, и решение (8) перестают зависеть от угла φ, в суммах (8) и (9) остается лишь один член при $k = 0$. При этом равенство (9) переходит в трансцендентное уравнение относительно СЧ ξ для чисто коаксиального случая:

$$\Omega_0(\xi,1) = \mathrm{J}_0(\xi) - \frac{\mathrm{J}_0(\xi\rho)}{\mathrm{N}_0(\xi\rho)}\mathrm{N}_0(\xi) = 0, \tag{9a}$$

а выражение (8) – в уравнение вида

$$n(X,\varphi) \propto \Omega_0(\xi, X). \tag{9b}$$

Поэтому целесообразно допустить, что при небольшом отклонении эксцентричного случая от коаксиального, т. е. при малых, но конечных значениях a (при $a << 1$), можно для приближенного решения задачи (1) ограничиться конечным числом членов M в суммах (8) и (9)[1]:

$$n(X,\varphi) \approx \sum_{k=0}^{M-1} C_k \cos(k\varphi)\,\Omega_k(\xi, X), \tag{10}$$

$$\sum_{k=0}^{M-1} C_k \cos(k\varphi_R)\,\Omega_k(\xi, X_R) = 0. \tag{11}$$

Далее, пусть M лучей исходят из начала координат O под углами

$$\varphi_j = \pi j/(M-1), \quad j = 0, 1, \ldots, (M-1)$$

и делят верхнюю полуокружность внутреннего круга $X = \rho$ на $(M - 1)$ одинаковых секторов. Наружную верхнюю полуокружность эти лучи пересекут в точках с приведенной радиальной координатой (см. выражение (7)):

$$X_j = \sqrt{1 - a^2 \sin^2\left(\frac{\pi j}{M-1}\right)} - a\cos\left(\frac{\pi j}{M-1}\right), \tag{12}$$

включая точки на оси X при $\varphi = 0, \pi$.

При поиске приближенного решения потребуем выполнения нулевых граничных условий (6) не во всех точках внешней полуокружности, а только в M ее верхних точках $\{X_j, \varphi_j\}$. Поскольку в симметрично расположенных нижних точках указанные граничные условия при этом выполнятся автоматически, то на всей внешней окружности нулевые граничные условия выполнятся в итоге в $(2M - 2)$ точках. Тогда выражение (11) перейдет в следующее:

$$\sum_{k=0}^{M-1} C_k \cos(k\varphi_j)\,\Omega_k(\xi, X_j) = 0; \quad j = 0, 1, \ldots, M-1, \tag{13}$$

которое представляет собой однородную систему линейных алгебраических уравнений (СЛАУ) с квадратной матрицей $M\times M$ относительно конечного числа M коэффициентов C_k.

Условием нетривиальности решения системы (13) является равенство нулю ее детерминанта. Отсюда можно найти приближенные значения первых M собственных чисел задачи (1). Так как между окружностями (т. е. в области, занимаемой плазмой разряда) функция $n(X,\varphi)$, описывающая концентрацию, нигде не должна становиться меньше нуля, физический смысл будет иметь лишь собственная функция, соответствующая наименьшему СЧ. Именно оно в дальней-

[1] В дальнейших расчетах правомочность этого допущения подтвердится.

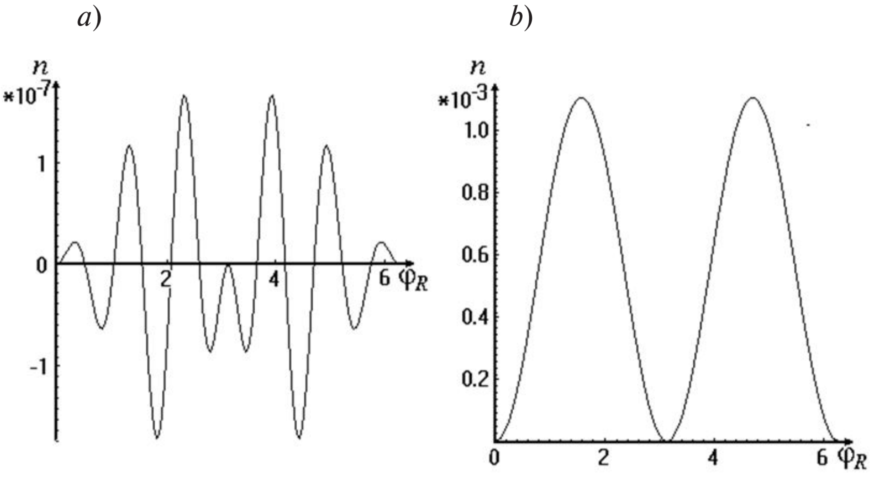


Рис. 2. Выполнение граничных условий (9) на наружной окружности при их точном задании в ($2M-2$) точках границы; представлены случаи $M = 7$ (*a*) и 2 (*b*); функция $n(X,\varphi)$ в максимуме положена равной 1

шем подставляется в равенство (13).

Ввиду однородности уравнения (1) его решение можно вычислить лишь с точностью до постоянного множителя. Поэтому коэффициенты C_k можно искать в относительных единицах, положив, например, $C_0 = 1$. Затем столбец матрицы СЛАУ (13), который содержит $C_0 = 1$, переносится в правую часть СЛАУ. Таким образом, система (13) будет преобразована из однородной в неоднородную, но переопределенную СЛАУ, содержащую M уравнений и ($M - 1$) неизвестных коэффициентов $C_1, C_2, ..., C_{M-1}$, численные значения которых можно вычислить по методу наименьших квадратов.

Расчет показал, что величины коэффициентов C_k быстро убывают с ростом k, так что при $a \le 0{,}2$ и $\rho \le 0{,}5$ подтверждается правомочность допущения о том, что конечность числа членов (10) и (11) не вносит заметной погрешности в решение $n(X,\varphi)$. Графики выполнения граничных условий (9) для семи и двух точек верхней полуокружности и, соответственно, для семи и двух членов суммы (10) показаны на рис. 2. Видно, что несмотря на малое число точек, граничные условия (9) выполняются удовлетворительно на всей внешней границе: разница в самих решениях $n(X,\varphi)$ для семи и двух членов (10) оказывается практически несущественной, а в собственных числах – в третьем знаке.

После вычисления коэффициентов $C_1, C_2, ..., C_{M-1}$ переменная $n(X,\varphi)$ нормируется на единицу в максимуме, и при этом величины $C_0, C_1, ..., C_{M-1}$ пересчитываются еще раз.

Расчетные результаты

Примеры решений по описанной процедуре показаны на рис. 3.

Необходимо отметить большую чувствительность формы $n(X,\varphi)$ к эксцентричности: заметная неоднородность $n(X,\varphi)$ от угла возникает уже при небольших значениях a (см. рис. 3). Чем больше значение ρ, тем при равных величинах a эта неоднородность сильнее. Количественно ее можно охарактеризовать отношением минимального к максимальному значению функции $n(X,\varphi)$ на «гребне» (см. рис. 3). График этого отношения $h2/h1$ показан на рис. 4, *a*.

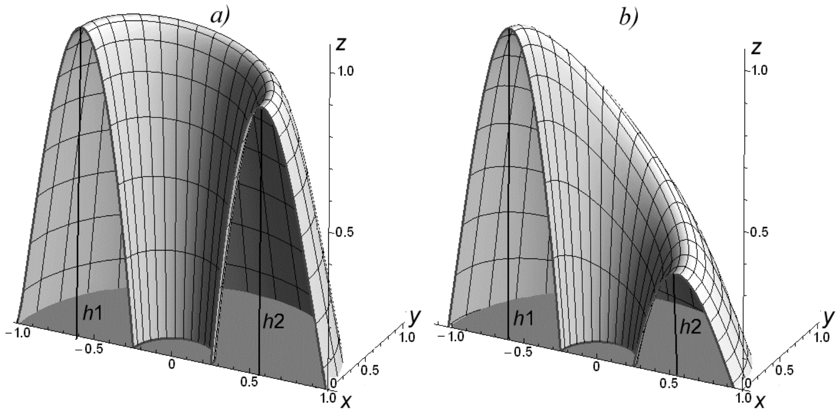


Рис. 3. 3D-распределения функции $n(X,\varphi)$ в верхней полуокружности, т. е. при $y \geq 0$ (см. рис. 1) для значений эксцентриситета $a = 0{,}01$ (*a*) и $0{,}04$ (*b*); приведенный радиус внутренней стенки $\rho = 0{,}25$

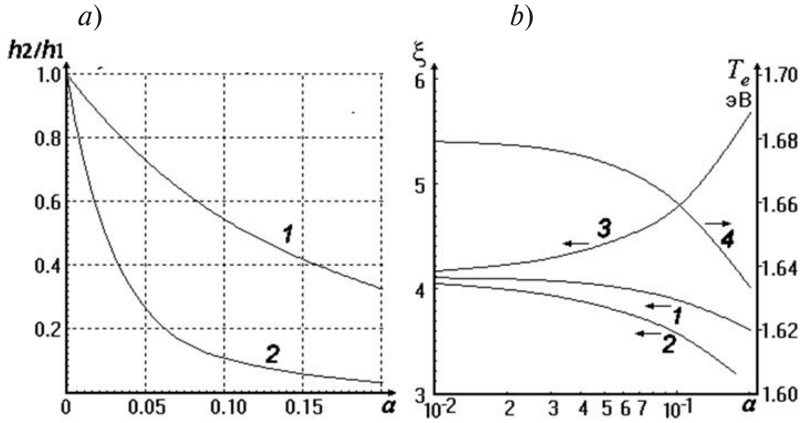


Рис. 4. Зависимости отношения $h2/h1$ (*a*), а также СЧ ξ и электронной температуры плазмы T_e (*b*) от эксцентриситета *a* газоразрядной трубки. Отношение $h2/h1$ (см. рис. 3) показывает неоднородность $n(X,\varphi)$ при $\rho = 0{,}05$ (*1*) и $0{,}25$ (*2*). Приведены также графики СЧ для эксцентричного (*1*) и коаксиальных (*2*, *3*) случаев с зазорами $1 - \rho + a$ (*2*) и $1 - \rho - a$ (*3*); величина T_e (*4*) рассчитана для плазмы Ar при давлении 1 Торр и $R = 1$ см для эксцентричного случая

Обсуждение результатов

В коаксиальном режиме ширина межстеночного зазора $b = 1 - \rho$ постоянна и не зависит от угла φ. Ввиду центральной симметрии, в коаксиальном режиме нет иного направления диффузионного потока, ортогонального току, помимо радиального.

Величина СЧ $\xi = R\sqrt{\nu_i / D_A}$ определяет величину температуры T_e, которая в рассматриваемом случае пониженного давления газа является постоянной по всему поперечному сечению положительного столба и соответствует равенству скоростей рождения электронов путем прямой ионизации в объеме и их гибели из-за амбиполярного диффузионного ухода на стенки в радиальном направлении [9, 10]. Само значение T_e как для коаксиальной, так и для эксцентричной геометрии разряда можно, зная величину СЧ ξ, определить из следующего выражения:

$$\xi = 8191CpR\sqrt{1+\frac{1}{2}\frac{W_i}{T_e}}\sqrt[4]{\frac{T_e}{W_i}}\exp\left(-\frac{1}{2}\frac{W_i}{T_e}\right),$$

где W_i, эВ, – потенциал ионизации атома газа; p, Торр, – давление газа; R, см, – радиус внешней стенки; C – константа, значения которой протабулированы в работах [9, 10] для различных газов.

Приведенное выражение выведено в данной статье из соотношения, полученного в работах [9, 10] и связывающего величину T_e с радиусом трубки и сортом газа для цилиндрической геометрии положительного столба тлеющего разряда в диффузионном режиме.

Для эксцентричного случая в рассматриваемых условиях положительного столба величина T_e при незначительном эксцентриситете мало отличается от идеального коаксиального случая. Пример зависимости T_e от a для разряда в аргоне при p = 1 Торр, R = 1,00 см и R_1 = 0,25 см показан на рис. 4,*b* (кривая *4*). Значение T_e лишь незначительно убывает от 1,68 эВ при a = 0 (коаксиальная геометрия) до 1,63 эВ при a = 0,2 (эксцентриситет). Заметим, что для цилиндрической геометрии, при тех же условиях, значение T_e составило бы всего 1,51 эВ.

Величина T_e и в эксцентричном разряде остается постоянной в объеме положительного столба, а значит, скорость ионизации постоянна по всему объему. Однако ширина межстеночного зазора b при $a > 0$ с изменением угла φ не сохраняется постоянной. Она меняется от $b_{min} = 1 - \rho - a$ при $\varphi = 0$ до $b_{max} = 1 - \rho + a$ при $\varphi = \pi$ (см. рис. 1), поэтому скорость радиального диффузионного устранения зависит от угла φ: она максимальна в области b_{min} и минимальна в области b_{max}. Расчеты показывают, что величина СЧ ξ при $a > 0$ (см. рис. 4,*b*, кривая *1*) принимает промежуточное значение между таковыми для двух контрольных коаксиальных случаев: с зазорами, равными b_{max} и b_{min} (кривые *2* и *3* соответственно). Это означает, что для эксцентричного случая в окрестности угла $\varphi \approx 0$ (где зазор самый узкий) скорость ионизации оказывается недостаточной для компенсации радиального диффузионного ухода частиц к стенкам, а в области $\varphi \approx \pi$ (широкий зазор) – избыточной.

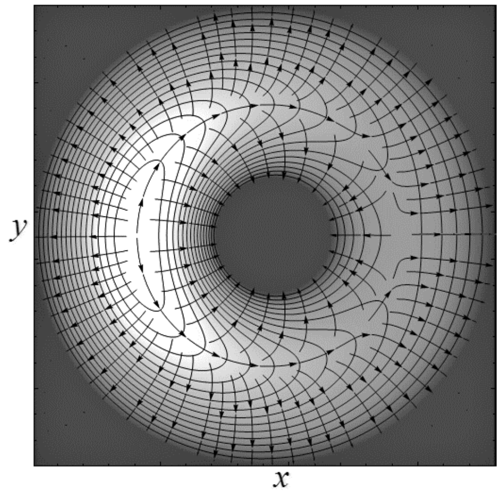


Рис. 5. Пространственное распределение $n(X,\varphi)$ (выражено яркостью и изолиниями), а также направления потоков электронов в поперечном сечении плазмы (линии со стрелками) в эксцентричной геометрии разряда для ρ = 0,25 и a = 0,04. «Компенсационный» поток течет в азимутальном направлении по гребню распределения $n(X,\varphi)$

Такой результат должен привести к следующим эффектам:

во-первых, вызвать рост электронной (и ионной) концентрации и ее градиента в области широкого зазора, а в области узкого – уменьшение названных параметров, по сравнению с коаксиальным случаем a = 0, т. е. привести к азимутально неоднородному распределению $n(X,\varphi)$ (см. рис. 3);

во-вторых, при таком распределении концентрации имеет место ее азимутальный градиент $\mathrm{grad}_\varphi[n(X,\varphi)]$ и соответствующий ему диффузионный поток электронов в азимутальном направлении, «перекачивающий» их из широкого зазора в узкий по обе стороны от внутренней стенки (рис. 5). Этот поток скомпенсирует избыточную генерацию электронов в широком зазоре, а также избыточность диффузионного устранения на стенки в узком зазоре; тем самым баланс заряженных частиц сойдется всюду. Но неоднородность распределения $n(X,\varphi)$ от угла φ при этом все же останется, так как названный поток, компенсирующий дисбаланс скоростей рождения и радиальной гибели заряженных частиц в разных областях поперечного сечения положительного столба, может протекать только при наличии азимутального градиента концентраций. Добавим, что наличие градиента концентрации электронов, направленного в среднем от узкого зазора к широкому вызовет появление постоянного электрического поля, направленного в среднем вдоль оси x. Это поле должно замедлить описанную диффузию электронов в азимутальном направлении до амбиполярной.

Заключение

Таким образом, отсутствие центральной симметрии пространственного распределения концентрации плазмы положительного столба в эксцентричной геометрии разряда можно считать характерным свойством плазмы в данной геометрии, фактически ответственным за соблюдение баланса заряженных частиц плазмы во всем предоставленном ей объеме. На саму величину температуры T_e незначительный эксцентриситет влияет мало. Однако для сохранения приемлемой азимутальной однородности разряда при переходе от цилиндрической к коаксиальной геометрии, необходимо обеспечить хорошую точность изготовления газоразрядного прибора: не следует допускать, чтобы расстояние между осями внутренней и внешней цилиндрических стенок превышало бы 1 – 2% от ширины межстеночного зазора.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Головицкий А.П.** Коаксиальный (трубчатый) тлеющий разряд в электроотрицательных газах // Журнал технической физики. 2016. Т. 86. № 7. С. 38–45.

2. **Головицкий А.П., Ремига О.А.** Сравнение способности испускания оптического излучения электроотрицательного тлеющего разряда в цилиндрической и коаксиальной геометрии // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2019. Т. 12. № 3. С. 101–109.

3. **Панченко А.Н., Скакун В.С., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф., Ломаев М.И.** Мощные коаксиальные эксилампы со средней мощностью более 100 Вт // Письма в Журнал технической физики. 1995. Т. 21. Вып. 20. С. 77–80.

4. **Lomaev M.I., Panchenko A.N., Skakun V.S., Sosnin E.A., Tarasenko V.F., Adamson M.G., Myers B.R., Wanga F.T.** Exilamps producing up to 130 W of output power and possibility of its applications // Laser and Particle Beams. 1997. Vol. 15. No. 2. Pp. 339–345.

5. **Panchenko A.N., Sosnin E.A., Tarasenko V.F.** Improvement of output parameters of glow discharge UV exilamps // Optics Communications. 1999. Vol. 161. No. 4–6. Pp. 249–252.

6. **Головицкий А.П.** Индуктивный высокочастотный разряд низкого давления в смеси инертных газов и галогенов для экономичных безртутных люминесцентных источников света // Письма в Журнал технической физики.1998. Т. 24. Вып. 6. С. 63–67.

7. **Golovitskii A., Pelli A.** Specific power of ultraviolet radiation from rf middle pressure discharge in a mixture of inert gas and chlorine // Proceedings of the 9-th International Conference on Plasma Physics and Plasma Technology (PPPT-9). Minsk, Belarus, Sept. 17 – 21, 2018. Pp. 61–64.

8. **Голант В.Е., Жилинский А.П., Сахаров И.Е.** Основы физики плазмы. М.: Атомиздат, 1977. 384 с.

9. **Грановский В.Л.** Электрический ток в газе. Установившийся ток. Под ред. Л.А. Сены и В.Е. Голанта. М.: Наука. Главная редакция физико-математической литературы, 1971. 544 с.

10. **Von Engel A., Steenbeck M.** Elektrische Gasentladungen: ihre Physik und Technik. Berlin: Verlag von Julius Springer, 1934. 352 S.

Статья поступила в редакцию 29.10.2020, принята к публикации 02.11.2020.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

ГОЛОВИЦКИЙ Александр Петрович – *доктор физико-математических наук, профессор Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
alexandergolovitski@yahoo.com

КОРЕНЮГИН Дмитрий Геннадиевич – *старший преподаватель Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
polarisdk@mail.ru

REFERENCES

1. **Golovitskii A.P.,** Coaxial (tubular) glow discharge in electronegative gases, Technical Physics. 61 (7) (2016) 995–1003.

2. **Golovitskii A.P., Remiga O.A.,** The electronegative glow discharge in the cylindrical and coaxial geometry: the comparison of optical radiation emission ability, St. Petersburg State Polytechnical University Journal. Physics and Mathematics. 12 (3) (2019) 92–100.

3. **Panchenko A.N., Skakun V.S., Sosnin E.A., et al.,** High-power coaxial excilamps with an average power of over 100 Watts, Tech. Phys. Lett. 21 (10) (1995) 851–852.

4. **Lomaev M.I., Panchenko A.N., Skakun V.S. et al.,** Exilamps producing up to 130 W of output power and possibility of its applications, Laser and Particle Beams. 15 (2) (1997) 339–345.

5. **Panchenko A.N., Sosnin E.A., Tarasenko V.F.,** Improvement of output parameters of glow discharge UV exilamps, Optics Communications. 161 (4–6) (1999) 249–252.

6. **Golovitskii A.P.,** Low-pressure inductive rf discharge in a rare gas-halogen mixture for economical mercury-free luminescence light sources, Tech. Phys. Lett. 24 (6) (1998) 233–234.

7. **Golovitskii A., Pelli A.,** Specific power of ultraviolet radiation from rf middle pressure discharge in a mixture of inert gas and chlorine, Proceedings of the 9-th International Conference on Plasma Physics and Plasma Technology (PPPT-9), Minsk, Belarus, Sept. 17 – 21 (2018) 61–64.

8. **Golant V.E., Zhilinskii A.P., Sakharov I.E.,** Fundamentals of plasma physics, John Wiley & Sons, New York, 1980.

9. **Granovskii V.L.,** Elektricheskiy tok v gaze. Ustanovivshiysya tok [Flow of electricity in the gas. The steady-state current], Edited by L.A. Sena, V.E Golant, Nauka, Moscow, 1971 (in Russian).

10. **Von Engel A., Steenbeck M.,** Elektrische Gasentladungen: ihre Physik und Technik, Verlag von Julius Springer, Berlin, 1934.

Received 29.10.2020, accepted 02.11.2020.

THE AUTHORS

GOLOVITSKII Alexander P.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
alexandergolovitski@yahoo.com

KORENYUGIN Dmitry G.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
polarisdk@mail.ru

DOI: 10.18721/JPM.14110
УДК 539.1.03

ПРОИЗВОДСТВО ИЗОТОПА МЕДИ-64 ПУТЕМ ОБЛУЧЕНИЯ ЦИКЛОТРОННОЙ МИШЕНИ ИЗ ПРИРОДНОГО НИКЕЛЯ ПУЧКОМ ПРОТОНОВ

А. Тиба, А.Ю. Егоров, Я.А. Бердников, В.Н. Ломасов

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Санкт-Петербург, Российская Федерация

Разработана методика расчета и выполнено численное моделирование процесса получения изотопа меди-64 по ядерной реакции ^{64}Ni (p, n)^{64}Cu. Требуемый радионуклид, применяемый в ядерной медицине, производится путем облучения мишени из природного никеля пучком протонов, получаемым на циклотроне. Условия проведения процесса диктовались возможностями циклотрона. В расчеты закладывалась начальная кинетическая энергия протонов 17 МэВ (ток равен 10 мкА). В результате получены зависимости наработки изотопа меди-64 от толщины мишени и от времени облучения, изучена глубина проникновения протонов в мишень, установлено, где концентрация ядер наработанного радионуклида максимальна. Анализ полученных данных позволил определить оптимальную толщину никелевой мишени, она составила 0,54 мм.

Ключевые слова: медь-64, природный никель, расчет выхода, толщина мишени, пучок протонов

Ссылка при цитировании: Тиба А., Егоров А.Ю., Бердников Я.А., Ломасов В.Н. Производство изотопа меди-64 путем облучения циклотронной мишени из природного никеля пучком протонов // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 138–146. DOI: 10.18721/JPM.14110

COPPER-64 ISOTOPE PRODUCTION THROUGH THE CYCLOTRON PROTON IRRADIATION OF THE NATURAL-NICKEL TARGET

A. Tiba, A.Yu. Egorov, Ya.A. Berdnikov, V.N. Lomasov

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,
St. Petersburg, Russian Federation

A design procedure and numerical simulation of a production process for Cu-64 isotope by the ^{64}Ni (p, n)^{64}Cu nuclear reaction have been developed. The required radionuclide applicable in the nuclear medicine is produced through irradiating a cyclotron target of natural nickel with a proton beam. The process conditions were dictated by the capabilities of the cyclotron; an initial kinetic energy of 17 MeV (at a current of 10 μA) was fed into computation. As a result, dependencies of the Cu-64 isotope production on the target thickness and on the irradiation time were obtained. The target depth of proton penetration was investigated, and it was established where the peak radionuclide concentration was produced. An analysis of the obtained data made possible the finding of the optimal thickness of the nickel target being of 0.54 mm.

Keywords: copper-64, natural nickel, yield calculation, target thickness, proton beam

Citation: Tiba A., Egorov A.Yu., Berdnikov Ya.A., Lomasov V.N., Copper-64 isotope production through the cyclotron proton irradiation of the natural-nickel target, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 138–146. DOI: 10.18721/JPM.14110

Введение

Как известно, лучевая диагностика и терапия базируются на использовании разнообразных радиофармпрепаратов, создаваемых на основе радиоактивных изотопов. Среди радионуклидов, принадлежащих к разным элементам, изотоп меди ^{64}Cu уникален, так как в процессе радиоактивного распада может испускать β^+-, β^--частицы (их энергии равны соответственно 0,65 и 0,57 МэВ, а значения выхода 17,5 и 38,5 %) и оже-электроны. Поэтому данный изотоп можно применять как в позитронно-эмиссионной томографии (ПЭТ), так и в тераностике (тераностика занимается созданием препаратов, служащих одновременно и средством ранней диагностики, и терапевтическим агентом) [1, 2]. Большими преимуществами данного изотопа перед прочими являются не только его химические свойства, но и большой период полураспада (12,7 ч), позволяющий упростить получение, транспортировку и применение меченных им радиофармпрепаратов, по сравнению с широко используемыми в настоящее время.

Возможность восстановления двухвалентной меди Cu^{2+} до одновалентной Cu^+ используется для молекулярной визуализации и локальной терапии гипоксических тканей, в том числе опухолевых [3, 4].

Клинические испытания препаратов на основе изотопа ^{64}Cu показали, что медь задерживается только в тех клетках мозга и сердца, которые обеднены кислородом. Меченные данным изотопом пептиды и антитела также можно употреблять в медицинской радиологии [5 – 8].

Сравнение препаратов на основе изотопа меди ^{64}Cu с таковыми на основе изотопа индия ^{111}In-Octreoscan, используемыми в настоящее время, показало преимущество первого как позитронного излучателя, поскольку при этом удалось визуализировать даже непредвиденные метастатические образования [9]. При клинических испытаниях конъюгата ^{64}Cu-TETA-mab1A3 (применяется при раке кишечника) показано преимущество ПЭТ с применением ^{64}Cu перед аналогичным меченным конъюгатом ^{111}In [10 – 12].

Радионуклид ^{64}Cu можно получать на ядерных реакторах по реакции захвата либо тепловых нейтронов ^{63}Cu(n, γ)^{64}Cu, либо быстрых нейтронов ^{64}Zn (n, p)^{64}Cu (n, p – нейтроны и протоны, γ – гамма-кванты). На циклотроне изотоп ^{64}Cu можно получать по реакции ^{64}Ni (p, n)^{64}Cu [13].

Однако выходы изотопа ^{64}Cu при получении на ядерном реакторе низки, и уровень их радионуклидной чистоты нередко оказывается неудовлетворительным [13]. Таким образом, для получения ^{64}Cu становится абсолютно необходимым проводить реакции на циклотронах, где они индуцируются заряженными частицами. Мишенью для производства изотопа ^{64}Cu на циклотронах может служить как природный, так и обогащенный (на 99,6 %) никель.

Целью настоящей работы является разработка методики расчета, соответствующих алгоритма и программы, а также проведение численного моделирования наработки изотопа ^{64}Cu путем бомбардировки протонами мишени из природной смеси изотопов никеля.

Численные параметры модели определялись характеристиками циклотрона МГЦ-20 Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого: энергия протонов – 17 МэВ при токе 10 мкА. Численное моделирование процесса позволяет определять оптимальную толщину мишени для максимального выхода требуемого изотопа.

Методика расчета

Как отмечено выше, для наработки ^{64}Cu используется пучок протонов с начальной энергией 17 МэВ (ток 10 мкА). Мишенью служит природная смесь изотопов никеля (процентное содержание изотопа ^{64}Ni в природном никеле составляет 0,926 %).

При расчетах учтены потери энергии протона на возбуждение и ионизацию при прохождении через вещество мишени [14]:

$$\left\langle -\frac{dE}{dx}\right\rangle = \frac{Kz^2Z\rho}{A\beta^2}\left[\frac{1}{2}\ln\left(\frac{2m_ec^2\beta^2\gamma^2W_{\max}}{I^2}\right) - \beta^2 - \frac{\delta(\beta_\gamma)}{2}\right], \quad (1)$$

где $-dE/dx$, МэВ/см, – удельные ионизационные потери (x – глубина проникновения протонов); z, Z – зарядовые числа снаряда и мишени соответственно; A, г/моль, – атомная масса; ρ, г/см^3, – плотность мишени; m_e, г, – масса электрона; c, см/с, – скорость света; β – отношение скорости снаряда к скорости света ($\beta = v/c$); γ – лоренц-фактор; $W_{\max}$, МэВ, – максимальная передача энергии в единичном столкновении; I, эВ, – средний ионизационный потенциал; $\delta(\beta\gamma)$ – коррекционный фактор, учитывающий влияние плотности мишени на ионизационный потенциал.

Коэффициент K рассчитывается по формуле

$$K = 4\pi N_A r_e^2 m_e c^2 = 0{,}307 \text{ МэВ/моль},$$

где N_A – постоянная Авогадро; r_e, см, – классический радиус электрона.

Максимальная передача энергии выражается как

$$W_{\max} = \frac{2m_ec^2\beta^2\gamma^2}{\left[1 + \frac{2\gamma m_e}{M} + \left(\frac{m_e}{M}\right)^2\right]},$$

где M, г, – масса частицы-снаряда.

Средний ионизационный потенциал атома никеля составляет (как и эта величина для других элементов) $I = 311 \pm 10$ эВ [15].

Следует учесть, что в нерелятивистском случае $\beta^2 << 1$; далее, частицей-снарядом является протон ($z = 1$, $M >> m_e$), потеря энергии осуществляется на электронных оболочках атомов всех изотопов никеля в природном никеле, т. е. $\rho = \rho_{\mathrm{Ni}} = 8{,}908$ г/см^3; $A = \langle A\rangle = 58{,}6934$ г/моль. Тогда формула (1) упрощается:

$$\left\langle -\frac{dE}{dx}\right\rangle = \left(\frac{KZ\rho}{A\beta^2}\right)\ln\left[\frac{2m_ec^2\beta^2}{I}\right]. \quad (2)$$

Решение уравнения (2) дает зависимость $E(x)$ – средней энергии протонов от глубины их проникновения.

Наработка изотопа Cu^{64} осуществляется за счет реакции Ni^{64} (p, n) Cu^{64}. Энергетическая зависимость сечения этой реакции $\sigma(E)$ измерена во многих экспериментах. В настоящей работе использовался результат объединения экспериментальных данных, представленный в работе [16].

Используя решение уравнения (2), перейдем к определению зависимости сечения реакции от глубины проникновения протонов $\sigma(x)$. Наработка Cu^{64} на различной глубине в мишени при этом будет определяться по формуле:

$$\frac{dN_{\mathrm{Cu}64}}{dx} = \left(\frac{Jn_{\mathrm{Ni}64}}{\lambda e}\right) \times \left(1 - \exp\left(-t\lambda_{rad}\right)\right)\sigma(x), \quad (3)$$

где $N_{\mathrm{Cu}64}$ – число ядер изотопа ^{64}Cu; J, А, – ток циклотрона; $n_{\mathrm{Ni}64}$ – концентрация ядер ^{64}Ni в природном никеле; λ – постоянная распада ^{64}Cu; e, Кл, – заряд электрона; t_{rad}, с, – время облучения мишени.

Интегрируя выражение (3) от нуля до толщины мишени τ, получим распределение наработки ^{64}Cu по глубине проникновения изотопа:

$$N_{\mathrm{Cu}64}(\tau, t_{rad}) = \int_0^\tau dx \left\{\frac{dN_{\mathrm{Cu}64}}{dx}\right\}, \quad (4)$$

Снижением потока протонов с глубиной, а также наличием других процессов, выводящих протоны, в данном случае можно пренебречь. Полученная формула не учитывает времени остывания мишени, которое можно учесть через домножение формулы на экспоненциальный множитель вида $\exp(-\lambda t_{cool})$. Из формулы (3) видно, что при $t_{rad} \approx 3/\lambda$ дальнейшее облучение нецелесообразно, поскольку кривая накопления выходит на плато.

Такое поведение зависимости связано с постепенным появлением соизмеримости скоростей наработки изотопа и его распада. Однако значение $1/\lambda$ для ^{64}Cu составляет 18,3 ч, что значительно превышает реальное время облучения. При $t_{rad} << 1/\lambda$ множитель

$$\left[1-\exp\left(-\lambda t_{rad}\right)\right]/\lambda \approx t_{rad},$$

т. е. наработка пропорциональна времени.

Результаты применения метода и их обсуждение

Решение уравнения (2) представлено на рис. 1,а для протонов с начальной кинетической энергией 17 МэВ и мишени из природного никеля. Видно, что протоны теряют всю свою энергию на глубине мишени 0,56 мм.

На рис. 1, *b* представлен результат интерполяции сечения реакции (3), полученный в работе [16]. Обработкой этой зависимости и с помощью решения уравнения (2) найдена зависимость сечения от глубины мишени (рис. 1,*c*). Видно, что сечение максимально при энергии протонов около 10 МэВ, которую они имеют на глубине примерно 0,32 мм. На этой же глубине будет и максимальная концентрация наработанных атомов ^{64}Cu.

На рис. 2,*a* представлены расчетные результаты по распределению числа атомов ^{64}Cu по глубине для различных времен облучения (взят интервал от 0,5 до 2 ч, см. формулу (3)). На рис. 2, *b* представлены результаты интегрирования зависимости (4) от толщины мишени τ для тех же самых времен облучения.

На рис. 3 представлены результаты расчета числа наработанных атомов ^{64}Cu в зависимости от двух периодов времени облучения (5 и 50 ч) для четырех значений толщины мишеней. Видно, что при времени облучения до 5 ч число наработанных атомов с хорошей точностью линейно растет, тогда как для бóльшего периода времени облучения наблюдается насыщение и выход на плато.

Анализ полученных расчетных данных позволяет заключить, что максимальная наработка ^{64}Cu достигается при толщине мишени 0,545 ± 0,006 мм. Основной вклад в погрешность обусловлен неопределенностью в измерении сечения σ(*E*) [16] при пороговой энергии реакции 2,5 МэВ (учтен вклад в неопределенность при использовании упрощенной формулы (2) вместо полной формулы (1)).

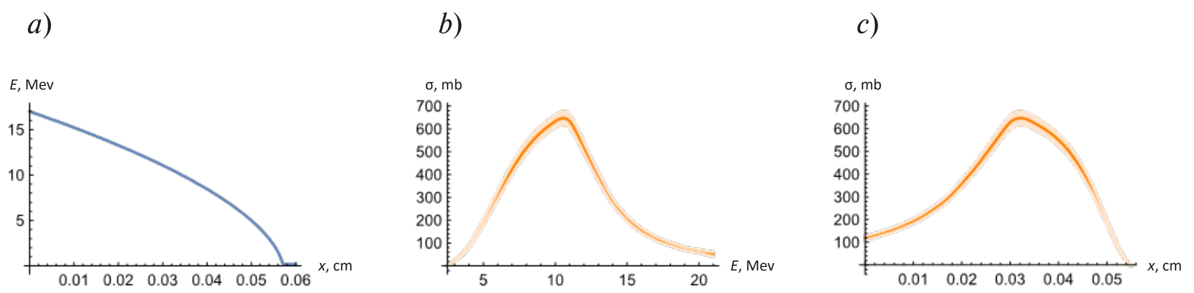


Рис. 1. Распределение энергии протонов по толщине мишени из природного никеля (решение уравнения (2)) (*a*) и зависимости сечения реакции ^{64}Ni(*p*, *n*)^{64}Cu от энергии протонов (*b*) и от глубины мишени (*c*).
Начальная кинетическая энергия протонов – 17 МэВ; на рис. *b*) и *c*) линиями показано поведение кривых «сечение», а полосами – погрешности его определения [16]

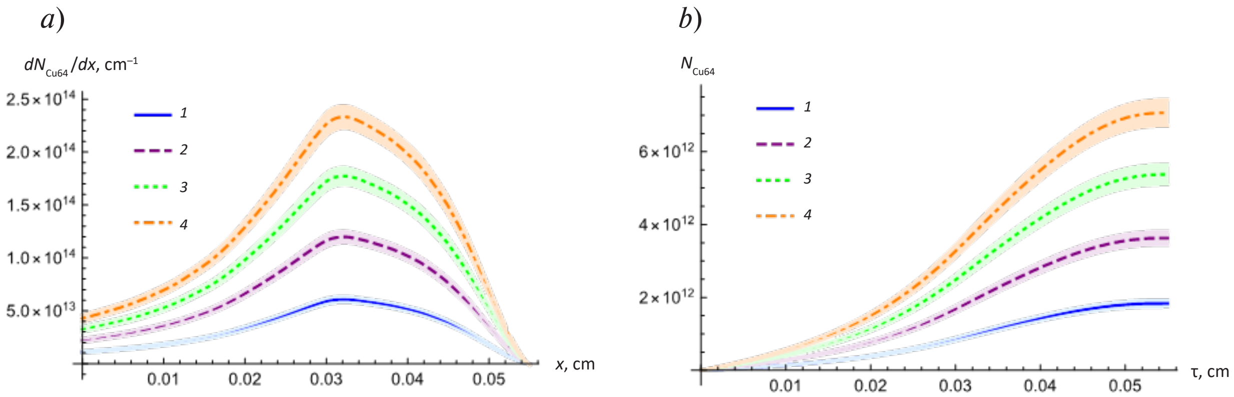


Рис. 2. Распределения ионизационных потерь атомов ^{64}Cu по глубине проникновения в мишень (*a*) и зависимости числа этих наработанных атомов от толщины мишени (*b*) для различного времени облучения, ч: 0,5 (*1*), 1,0 (*2*), 1,5 (*3*), 2,0 (*4*).
Линиями показаны кривые зависимостей, а полосами – погрешности их определения (связаны с погрешностями нахождения сечения реакции)

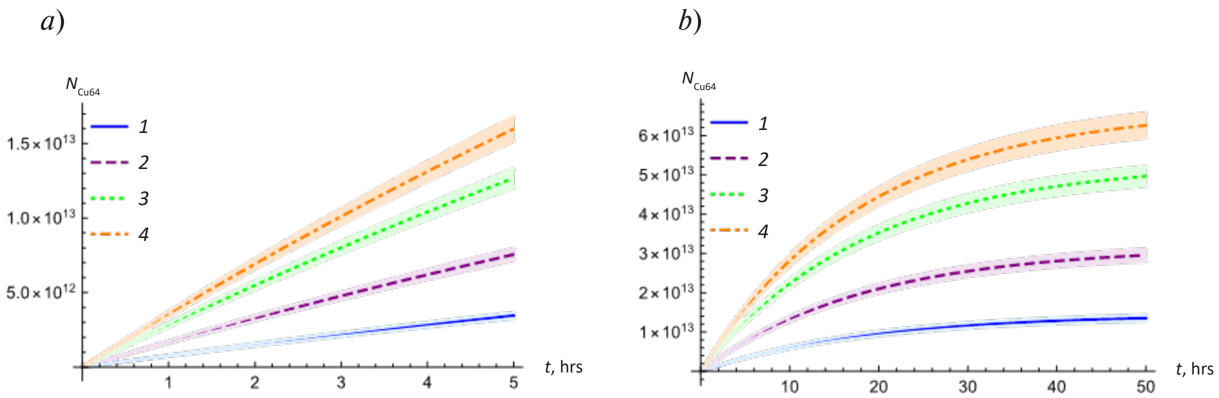


Рис. 3. Динамика числа наработанных атомов ^{64}Cu за 5 ч (*a*) и 50 ч (*b*) облучения для мишеней различной толщины τ, мм: 0,2 (*1*), 0,3 (*2*), 0,4 (*3*), 0,5 (*4*).
Линиями показаны кривые зависимостей, а полосами – погрешности их определения (связаны с погрешностями нахождения сечения реакции)

Дальнейшее наращивание толщины мишени не должно приводить к увеличению наработки, так как при больших значениях толщины средняя энергия протонов становится ниже пороговой энергии реакции. Максимальная концентрация ядер ^{64}Cu находится на глубине мишени от 0,20 до 0,49 мм.

Таким образом, указанное значение толщины мишени, т.е. 0,545 ± 0,006 мм, следует считать оптимальным для наработки максимального количества изотопа ^{64}Cu.

Заключение

В настоящей работе разработана расчетная методика и по ней выполнено численное моделирование процесса получения изотопа ^{64}Cu, важного для применения в ядерной медицине. Рассмотрен процесс наработки изотопа ^{64}Cu путем облучения мишени из природного никеля пучком протонов, получаемым на циклотроне. Начальная кинетическая энергия протонов – 17 МэВ при токе 10 мкА.

Расчетным путем были получены зависимости наработки изотопа ^{64}Cu от толщины мишени и от времени облучения. Определена глубина мишени, на которой концентрация ядер наработанного изотопа максимальна.

В результате выполненного моделирования процесса была найдена оптимальная толщина мишени, составляющая 0,54 мм, для наработки максимального количества изотопа ^{64}Cu. Полученный результат очень важен для диагностики и терапии различных заболеваний, применяемых в ядерной медицине.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Fujibayashi Y., Taniuchi H., Wada K., Yonekur Y., Konishi J., Yokoyama A.** Differential mechanism of retention of Cu-pyruvaldehyde-bis(N4-methylthiosemicarbazone) (Cu-PTSM) by brain and tumor: A novel radiopharmaceutical for positron emission tomography imaging // Annals of Nuclear Medicine. 1995. Vol. 9. No. 1. Pp. 1–5.

2. **Philpott G.W., Schwarz S.W., Anderson C.J., Dehdashti F., Connett J.M., Zinn K., Meares C.F., Cutler P.D., Welsh M.J., Siegel B.A.** Radioimmuno PET: Detection of colorectal carcinoma with positron-emitting copper-64-labeled monoclonal antibody // Journal of Nuclear Medicine. 1995. Vol. 36. No. 10. Pp. 1818–1824.

3. **Blower P.J, Lewis J.S., Zweit J.** Copper radionuclides and radiopharmaceuticals in nuclear medicine // Nuclear Medicine and Biology 1996. Vol. 23. No 8. Pp. 957–980.

4. **Bass L.A., Wang M., Welch M.J., Anderson C.J.** In vivo transchelation of copper-64 from TETA-octreotide to superoxide dismutase in rat liver // Bioconjugate Chemistry. 2000. Vol. 11. No. 4. Pp. 527–532.

5. **Sprague J.E., Peng Y., Sun X., Weisman G.R., Wong E.H., Achilefu S., Anderson C.J.** Preparation and biological evaluation of copper-64-labeled tyr3-octreotate using a cross-bridged macrocyclic chelator // Clinical Cancer Research. 2004. Vol. 10. No. 24. Pp. 8674–8682.

6. **Oh M., Tanaka T., Kobayashi M., Furukawa T., Mori T., Kudo T., Fujieda S., Fujibayashi Y.** Radio-copper-labeled Cu-ATSM: an indicator of quiescent but clonogenic cells under mild hypoxia in a Lewis lung carcinoma model // Nuclear Medicine and Biology. 2009. Vol. 36. No. 4. Pp. 419–426.

7. **Boswell C.A., Regino C.A.S., Baidoo K.E., Wong K.J., Milenic D.E., Kelley J.A., Lai C.C., Brechbiel M.W.** A novel side-bridged hybrid phosphonate/acetate pendant cyclam: Synthesis, characterization, and ^{64}Cu small animal PET imaging // Bioorganic & Medicinal Chemistry. 2009. Vol. 17. No. 2. Pp. 548–552.

8. **Holland J.P., Ferdani R., Anderson C.J., Lewis J.S.** Copper-64 radiopharmaceuticals for oncologic imaging // PET Clinics. 2009. Vol. 4. No. 1. Pp. 49–67.

9. **Hoffman T.J., Smith C.J.** True radiotracers: Cu-64 targeting vectors based upon bombesin peptide // Nuclear Medicine and Biology. 2009. Vol. 36. No. 6. Pp. 579–585.

10. **Kiani S., Staples R.J., Treves S.T., Packard A.B.** Synthesis and characterization of a tetramethyl furanone functionalized diiminedioxime, a potential ligand for ^{64}Cu radiopharmaceuticals, and its copper(II) and nickel(II) complexes // Polyhedron. 2009. Vol. 28. No. 4. Pp. 775–785.

11. **Matarrese M., Bedeschi P., Scardaoni R., et al.** Automated production of copper radioisotopes and preparation of high specific activity [^{64}Cu] Cu-ATSM for PET studies // Applied Radiation and Isotopes. 2010. Vol. 68. No. 1. Pp 5–13.

12. **Pfeifer A., Knigge U., Mortensen J., et al.** Clinical PET of neuroendocrine tumors using ^{64}Cu-DOTATATE: First-in-humans study // Journal of Nuclear Medicine. 2012. Vol. 53. No. 8. Pp. 1207–1215.

13. **Zweit J., Smith A.M., Downey S., Sharma H.L.** Excitation functions for deuteron induced reactions in natural nickel: Production of no-carrier-added ^{64}Cu from enriched ^{64}Ni targets for positron emission tomography // International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes. 1991. Vol. 42. No. 2. Pp. 193–197.

14. **Tanabashi M., Hagiwara K., Hikasa K., et**

al. (Particle Data Group). Review of Particle Physics // Physical Review. D. 2018. Vol. 98. No. 3. P. 030001.

15. **Seltzer S.M., Berger M.J.** Evaluation of the collision stopping power of elements and compounds for electrons and positrons // The International Journal of Applied Radiation and Isotopes. 1982. Vol. 33. No. 11. Pp. 1189–1218.

16. **Aslam M.N., Sudár S., Hussain M., Malik A.A., Shah H.A., Qaim S.M.** Charged particle induced reaction cross section data for production of the emerging medically important positron emitter ^{64}Cu: A comprehensive evaluation // Radiochimica Acta. 2009. Vol. 97. No. 12. Pp. 669–686.

Статья поступила в редакцию 19.10.2020, принята к публикации 09.02.2021.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

ТИБА Али – *аспирант Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
alitiba1991@gmail.com

ЕГОРОВ Анатолий Юрьевич – *ассистент Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
egorov.a@spbstu.ru

БЕРДНИКОВ Ярослав Александрович – *доктор физико-математических наук, профессор Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
berdnikov@spbstu.ru

ЛОМАСОВ Владимир Николаевич – *кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, руководитель лабораторий научно-технологического комплекса «Ядерная физика» Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
lomasov_vn@spbstu.ru

REFERENCES

1. **Fujibayashi Y., Taniuchi H., Wada K., et al.,** Differential mechanism of retention of Cu-pyruvaldehyde-bis(N4-methylthiosemicarbazone) (Cu-PTSM) by brain and tumor: A novel radiopharmaceutical for positron emission tomography imaging, Annals of Nuclear Medicine. 9 (1) (1995) 1–5.

2. **Philpott G.W., Schwarz S.W., Anderson C.J., et al.,** Radioimmuno PET: Detection of colorectal carcinoma with positron-emitting copper-64-labeled monoclonal antibody, Journal of Nuclear Medicine. 36 (10) (1995) 1818–1824.

3. **Blower P.J, Lewis J.S., Zweit J.,** Copper radionuclides and radiopharmaceuticals in nuclear medicine, Nuclear Medicine and Biology. 23 (8) (1996) 957–980.

4. **Bass L.A., Wang M., Welch M.J., Anderson C.J.,** In vivo transchelation of copper-64 from TETA-octreotide to superoxide dismutase in rat liver,

Bioconjugate Chem. 11 (4) (2000) 527–532.

5. **Sprague J.E., Peng Y., Sun X., et al.,** Preparation and biological evaluation of copper-64-labeled tyr3-octreotate using a cross-bridged macrocyclic chelator, Clinical Cancer Research. 10 (24) (2004) 8674–8682.

6. **Oh M., Tanaka T., Kobayashi M., et al.,** Radio-copper-labeled Cu-ATSM: an indicator of quiescent but clonogenic cells under mild hypoxia in a Lewis lung carcinoma model, Nuclear Medicine and Biology. 36 (4) (2009) 419–426.

7. **Boswell C.A., Regino C.A.S., Baidoo K.E., et al.,** A novel side-bridged hybrid phosphonate/acetate pendant cyclam: Synthesis, characterization, and ^{64}Cu small animal PET imaging, Bioorganic & Medicinal Chemistry. 17 (2) (2009) 548–552.

8. **Holland J.P., Ferdani R., Anderson C.J., Lewis J.S.,** Copper-64 radiopharmaceuticals for oncologic imaging, PET Clinics. 4 (1) (2009) 49–67.

9. **Hoffman T.J., Smith C.J.,** True radiotracers: Cu-64 targeting vectors based upon bombesin peptide, Nuclear Medicine and Biology. 36 (6) (2009) 579–585.

10. **Kiani S., Staples R.J., Treves S.T., Packard A.B.,** Synthesis and characterization of a tetramethyl furanone functionalized diiminedioxime, a potential ligand for ^{64}Cu radiopharmaceuticals, and its copper(II) and nickel(II) complexes, Polyhedron. 28 (4) (2009) 775–785.

11. **Matarrese M., Bedeschi P., Scardaoni R., et al.,** Automated production of copper radioisotopes and preparation of high specific activity [^{64}Cu]Cu-ATSM for PET studies, Applied Radiation and Isotopes. 68 (1) (2010) 5–13.

12. **Pfeifer A., Knigge U., Mortensen J., et al.,** Clinical PET of neuroendocrine tumors using ^{64}Cu-DOTATATE: First-in-humans study, Journal of Nuclear Medicine. 53 (8) (2012) 1207–1215.

13. **Zweit J., Smith A.M., Downey S., Sharma H.L.,** Excitation functions for deuteron induced reactions in natural nickel: Production of no-carrier-added ^{64}Cu from enriched ^{64}Ni targets for positron emission tomography, International Journal of Radiation Applications and Instrumentation, Part A. Applied Radiation and Isotopes. 42 (2) (1991) 193–197.

14. **Tanabashi M., Hagiwara K., Hikasa K., et al.** (Particle Data Group), Review of particle physics, Physical Review, D. 98 (3) (2018) 030001.

15. **Seltzer S.M., Berger M.J.,** Evaluation of the collision stopping power of elements and compounds for electrons and positrons, The International Journal of Applied Radiation and Isotopes. 33 (11) (1982) 1189–1218.

16. **Aslam M.N., Sudár S., Hussain M., et al.,** Charged particle induced reaction cross section data for production of the emerging medically important positron emitter ^{64}Cu: A comprehensive evaluation, Radiochimica Acta. 97 (12) (2009) 669–686.

Received 19.10.2020, accepted 09.02.2021.

THE AUTHORS

TIBA Ali

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University

29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation

alitiba1991@gmail.com

EGOROV Anatoliy Yu.

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University

29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation

egorov.a@spbstu.ru

BERDNIKOV Yaroslav A.

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University

29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation

berdnikov@spbstu.ru

LOMASOV Vladimir N.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
lomasov_vn@spbstu.ru

DOI: 10.18721/JPM.14111
UDC 530.12:517.988.38(075.8)

THE PROPER MASS OF THE UNIVERSE

N.N. Gorobey[1], **A.S. Lukyanenko**[1], **A.V. Goltsev**[2]

[1] Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, St. Petersburg, Russian Federation;

[2] Ioffe Institute of the Russian Academy of Sciences, St. Petersburg, Russian Federation

A modification of the covariant theory based on the concept of the proper mass (mass distribution) of the system is proposed. The proper mass is a special dynamic quantity that forms a fundamental frame of reference for measuring proper time and spatial shifts without violating the theory's covariance. A simple model of an ingomogeneous system (universe, string) with two proper time parameters, whose constraint algebra is isomorphic to SL2, is considered.

Keywords: universe, time, mass, covariance, reference frame, algebra of constraints

Citation: Gorobey N.N., Lukyanenko A.S., Goltsev A.V., The proper mass of the universe, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 147–154. DOI: 10.18721/JPM.14111

СОБСТВЕННАЯ МАССА ВСЕЛЕННОЙ

Н.Н. Горобей[1], **А.С. Лукьяненко**[1], **А.В. Гольцев**[2]

[1] Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация;

[2] Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Российская Федерация

Предложена модификация ковариантной теории, основанная на понятии собственной массы (распределение масс) системы. Собственная масса является особой динамической величиной, которая образует фундаментальную систему отсчета для измерения собственного времени и пространственных сдвигов без нарушения ковариантности теории. Рассмотрена простая модель неоднородной системы (Вселенная, струна) с двумя параметрами собственного времени, алгебра связей которой изоморфна SL2.

Ключевые слова: Вселенная, время, масса, ковариантность, система обсчета, алгебра связей

Ссылка при цитировании: Горобей Н.Н., Лукьяненко А.С., Гольцев А.В. Собственная масса Вселенной // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 147–154. DOI: 10.18721/JPM.14111

Introduction

The quantization of covariant theories, to which we include gauge theories with constraints linear in momenta, as well as the theory of gravity and string theory with quadratic in momenta (Hamiltonian) constraints, makes it necessary to expand their phase space by including Lagrange multipliers and ghosts along with the corresponding canonical momenta [1 – 6]. However, in the simplest case of the reparametrization-invariant theory of a relativistic particle, all this construction is reduced to introducing the particles proper time parameter into the initial action, followed by integrating the wave function over this parameter within [0, ∞) [7]. The result is a representation of the Feynman propagator of a particle, which was first proposed by V.A. Fock [8] and J. Schwinger [9]. Based on this, a simplified procedure for quantizing the covariant theory was proposed in Ref. [10], in which the parameters of finite symmetry transformations (including the proper time in reparameterization-invariant theories) are introduced into the classical theory as additional coordinates.

The equations of constraints in quantum theory with this modification take the form of evolution equations on a group space, and the invariant propagator is obtained after integrating the wave function over the group parameters over the entire area of their variation (for proper time, these are the functional space (FS) integrals within [0, ∞)) with a simple measure equal to 1. However, in contrast to gauge theories with linear momentum constraints, FS integrals are not removed by delta functions from Hamiltonian constraints. This means that in quantum theory there is no time parameter. In Ref. [11], to solve the problem of time in the case of a homogeneous isotropic model of the universe, the second stage of modification is proposed, in which an additional condition is imposed on the dynamics of proper time as an independent dynamic variable. It consists in adding to the initial action its small variation generated by the infinitesimal shift of proper time. As a result, a new quantity arises in the theory – mass-energy, which corresponds to its own time. In a homogeneous universe, this quantity is an integral of motion and must be added to the original set of constants of the universe. In Ref. [11], it was also suggested that the mass of the universe, taking into account the multi-turnaround of time in the general case [12], will have the character of a distribution, which should be supplemented by the corresponding mass flux density. The purpose of this work is to substantiate this assumption by the example of a simple dynamical system with two proper time parameters and with the algebra of constraints identical to SL (2, *R*). In this case, we will have two components of its own mass and a flow between them. These three parameters are not integrals of motion. They are present in the energy-momentum balance of the system (constraint equations), and should be considered as observable quantities. Their equations of motion, together with the equations of constraints, make it possible to remove integration over the parameters of proper time and thereby solve the problem of time in the quantum theory.

The first stage of modification of SL (2, *R*)-model

The initial Lagrange function of the considered dynamic system has the form:

$$\begin{gathered} L=\frac{1}{2N_1}\left(\dot{u}-N_3u\right)^2+ \\ +\frac{1}{2N_3}\left(\dot{v}+N_3v\right)^2+\frac{N_1}{2}v^2+\frac{N_2}{2}u^2, \end{gathered} \tag{1}$$

where the dot denotes derivatives with respect to an arbitrary parameter τ; N_1, N_2 are the lapse functions, N_3 is the shift function [12].

Minkowski indices u_μ, v_ν, μ, ν = 0, 1, 2, 3 are implied and abbreviated notation for the invariants of the Minkowski space are used.

Hamilton's function is reduced to a linear combination of constraints

$$h=N_1H_1+N_2H_2+N_3D, \tag{2}$$

where

$$\begin{gathered} H_1=\frac{1}{2}\left(p^2-v^2\right),\quad H_2=\frac{1}{2}\left(\pi^2-u^2\right), \\ D=pu-\pi v. \end{gathered} \tag{3}$$

The Poisson brackets of these constraints form the algebra SL(2, *R*) [13]:

$$\begin{gathered} \left\{D,H_1\right\}=2H_1,\quad \left\{D,H_2\right\}=-2H_2, \\ \left\{H_1,H_2\right\}=D. \end{gathered} \tag{4}$$

This algebra will serve us as the simplest analogue of the algebra of constraints of the theory of gravity (and string [14]). The constraints are generators of infinitesimal symmetry transformations of the canonical variables, which are compensated by the transformation of the lapse and shift functions [1],

$$\delta N_\alpha = \dot{\varepsilon}_\alpha - C_{\beta\gamma\alpha} N_\beta \varepsilon_\gamma, \tag{5}$$

which ensures the invariance of the action (in this case $C_{311} = 2$, $C_{322} = -2$, $C_{123} = 1$).

At the first stage of the modification of the dynamic theory, as additional generalized coordinates, we introduce the parameters of finite symmetry transformations that arise as a result of the integration of the system of functional differential equations:

$$N_\beta = \dot{s}_\alpha \Lambda_{\alpha\beta}, \tag{6}$$

where the functions $\Lambda_{\alpha\beta}$ obey the system of differential equations [10]:

$$\frac{\partial \Lambda_{\alpha\beta}}{\partial s_\gamma} - \frac{\partial \Lambda_{\gamma\beta}}{\partial s_\alpha} + \Lambda_{\alpha\delta} \Lambda_{\gamma\omega} C_{\delta\omega\beta} = 0. \tag{7}$$

The modified theory is obtained by substituting (6) into the original Lagrange function (1).

The modified Hamilton function reduces to a linear combination of modified constraints

$$p_{s_\alpha} - \Lambda_{\alpha 1} H_1 - \Lambda_{\alpha 2} H_2 - \Lambda_{\alpha 3} D = 0, \tag{8}$$

which form a closed algebra with trivial Poisson brackets.

It is these constraints, in quantum theory that have the form of evolution equations on a group space with coordinates s_α. Since these coordinates are not observable, one should take additional integrals over them of the wave function over the entire range of their variation on the manifold of the group. For the parameters of proper time, these are the integrals of the FS within $[0, \infty)$. As a result of this integration, the wave function loses its dynamic meaning. It is necessary to take the next step in modifying the original theory [11], which will remove additional integrals.

Second stage of the theory modification

Considering the coordinates on the group space as independent dynamic variables, we take their classical equations of motion as additional conditions. The latter are obtained as a result of the infinitesimal shift of these variables $s_\alpha \to s_\alpha + \varepsilon_\alpha$ in the action.

Thus, the finally modified Lagrange function takes the form:

$$\begin{aligned} \tilde{L} = {} & \frac{1}{2}\left[\frac{(\dot{u} - N_3 u)^2}{N_1} + v^2 N_1\right]^2 + \\ & + \frac{1}{2}\left[\frac{(\dot{v} + N_3 v)^2}{N_2} + u^2 N_2\right] - \\ & - \frac{1}{2}\left[\frac{(\dot{u} - N_3 u)^2}{N_1^2} + v^2\right]\delta N_1 - \\ & - \frac{1}{2}\left[\frac{(\dot{v} + N_3 v)^2}{N_2^2} + u^2\right]\delta N_2 - \\ & - \left[u\frac{(\dot{u} - N_3 u)}{N_1} - v\frac{(\dot{v} + N_3 v)}{N_2}\right]\delta N_3. \end{aligned} \tag{9}$$

Below we will see that this modification significantly changes the theory in the right direction – the removal of the integrals of the FS over its group evolution parameters.

We turn to the Hamiltonian form of the modified theory. Let's find the canonical momenta:

$$p = \frac{(\dot{u} - N_3 u)}{N_1}\left(1 - \frac{\delta N_1}{N_1}\right) - u\frac{\delta N_3}{N_1}, \tag{10}$$

$$\pi = \frac{(\dot{v} + N_3 v)}{N_2}\left(1 - \frac{\delta N_2}{N_2}\right) + v\frac{\delta N_3}{N_2}, \tag{11}$$

$$p_{s_\alpha} = -H_1 \Lambda_1^\beta - H_2 \Lambda_2^\beta -$$

$$
\begin{gathered}
-H_1\frac{\partial\Lambda_1^\beta}{\partial s_\gamma}\varepsilon_\gamma-H_2\frac{\partial\Lambda_2^\beta}{\partial s_\gamma}\varepsilon_\gamma-\\
-D\frac{\partial\Lambda_3^\beta}{\partial s_\gamma}\varepsilon_\gamma+\\
+\frac{\left(\dot u-N_3u\right)^2}{N_1^2}\frac{\delta N_1}{N_1}\Lambda_1^\beta+\\
+\frac{\left(\dot v+N_3v\right)^2}{N_2^2}\frac{\delta N_2}{N_2}\Lambda_2^\beta+\\
+u\frac{\left(\dot u-N_3u\right)}{N_1}\frac{\delta N_3}{N_1}\Lambda_1^\beta-\\
-v\frac{\left(\dot v+N_3v\right)}{N_2}\frac{\delta N_3}{N_2}\Lambda_2^\beta,
\end{gathered}
\tag{12}
$$

$$
P_{\varepsilon_\beta}=-H_1\Lambda_1^\beta-H_2\Lambda_2^\beta-D\Lambda_3^\beta. \tag{13}
$$

The Hamilton function, as expected, is reduced to a linear combination of new constraints, which are here used by Eqs. (12).

In these equations, velocities should be eliminated by expressing them in terms of canonical momenta. First, eliminate the variation δN_1, δN_2, δN_3. To do this, we use the old constraints that are contained in Eqs. (13) together with the new dynamic variables, which are the two components of the mass distribution in our model universe and the mass flow. We express the old connections through new dynamic variables by solving Eqs. (13) using a triple of 3-vectors $\Omega_\beta^1,\Omega_\beta^2,\Omega_\beta^3$, each of which is orthogonal to the corresponding additional pair of column vectors $\Lambda_1^\beta,\Lambda_2^\beta,\Lambda_3^\beta$:

$$
\begin{gathered}
H_1=-\frac{\left(P_\varepsilon,\Omega^1\right)}{\left(\Omega^1,\Lambda_1\right)},\quad H_2=-\frac{\left(P_\varepsilon,\Omega^2\right)}{\left(\Omega^2,\Lambda_2\right)},\\
D=-\frac{\left(P_\varepsilon,\Omega^3\right)}{\left(\Omega^3,\Lambda_3\right)}.
\end{gathered}
\tag{14}
$$

We find the variations δN_1, δN_2 from the Hamiltonian constraints:

$$
\begin{gathered}
1-\frac{\delta N_1}{N_1}=\frac{\sqrt{\left(p+u\frac{\delta N_3}{N_1}\right)^2}}{\sqrt{H_1+v^2}},\\
1-\frac{\delta N_2}{N_2}=\frac{\sqrt{\left(\pi-v\frac{\delta N_3}{N_2}\right)^2}}{\sqrt{H_2+u^2}},
\end{gathered}
\tag{15}
$$

and for the variations δN_3 the momentum constraint remains:

$$
\begin{gathered}
D=\frac{u\left(p+u\frac{\delta N_3}{N_1}\right)}{1-\frac{\delta N_1}{N_1}}-\\
-\frac{v\left(\pi-v\frac{\delta N_3}{N_2}\right)}{1-\frac{\delta N_2}{N_2}}.
\end{gathered}
\tag{16}
$$

which we cannot solve explicitly.

We only note that the variation δN_3 is a homogeneous function of the first degree of the canonical momenta, as well as Eqs. (15), which contain square roots. After that, we can substitute the velocities (10), (11) in Eqs. (12) and obtain the required equations of new constraints.

Leaving these constraints in the same implicit form, we write the modified action in the canonical form:

$$
\begin{gathered}
\tilde I\doteq\int d\tau\Big[p\dot u+\pi\dot v+p_{s_\alpha}\dot s_\alpha-\\
-\dot P_{\varepsilon_\alpha}\varepsilon_\alpha-\tilde N_\alpha\left(p_{s_\alpha}-\tilde h_\alpha\right)\Big],
\end{gathered}
\tag{17}
$$

where $\tilde h_\alpha$ denotes the right hand side of the Eqs. (12).

Here we consider infinitesimal shifts as canonical momenta. We will see the solution to the problem of time in our "universe" when we exclude momenta in this canonical form of action and write it again in Lagrangian form. We can do this explicitly.

Proper time

We will be the first to exclude the momenta p_{s_α} conjugated to the group parameters s_α. As a result, we get $\tilde{N}_\alpha = \dot{s}_\alpha$. Next we exclude infinitesimal shifts. This gives the equations of motion in the form of the law of the change in time of new dynamic variables:

$$Q_\gamma = \dot{P}_{\varepsilon_\alpha} + \\ + \frac{\left(P_\varepsilon, \Omega^1\right)}{\left(\Omega^1, \Lambda_1\right)} \frac{\partial \Lambda_1^\beta}{\partial s_\gamma} \dot{s}_\beta + \frac{\left(P_\varepsilon, \Omega^2\right)}{\left(\Omega^2, \Lambda_2\right)} \frac{\partial \Lambda_2^\beta}{\partial s_\gamma} \dot{s}_\beta + \\ + \frac{\left(P_\varepsilon, \Omega^3\right)}{\left(\Omega^3, \Lambda_3\right)} \frac{\partial \Lambda_3^\beta}{\partial s_\gamma} \dot{s}_\beta = 0. \qquad (18)$$

The last ones we exclude the canonical momenta corresponding to the "physical" degrees of freedom – the Minkowski coordinates u_μ, v_ν. Here the difficulty remains associated with the absence of an explicit solution of the constraint equations with respect to variations δN_1, δN_2, δN_3. However, it is easy to see that the resulting dependence of the modified Hamiltonian on the canonical momenta is a homogeneous function of the first degree. The consequence is that all terms in the canonical action (17), depending on the canonical momenta, disappear.

Thus, the dependence of the modified action on all velocities disappears, except for the one contained in the equations of motion (18), as well as in the old constraints (4), which we must now remember and add to the action as additional conditions. We also recall that the implicit solution of these constraints involves the operation of extracting a square root with a choice of the sign of this root. We must perform the same operation under additional conditions, writing down the Hamiltonian constraints with square roots of the kinetic energies of the physical degrees of freedom. As a result, we get the modified action in the form

$$\tilde{I} \doteq \int d\tau \times \\ \times \left\{ \varepsilon_\beta Q_\beta + \lambda_1 \left[\sqrt{\left(\dot{u} - N_3 u\right)^2} - N_1 \sqrt{v^2 - \frac{\left(P_\varepsilon, \Omega^1\right)}{\left(\Omega^1, \Lambda_1\right)}} \right] + \right. \\ + \lambda_2 \left[\sqrt{\left(\dot{v} + N_3 v\right)^2} - N_2 \sqrt{u^2 - \frac{\left(P_\varepsilon, \Omega^2\right)}{\left(\Omega^2, \Lambda_2\right)}} \right] + \\ + \lambda_3 \left[\sqrt{\frac{N_2}{N_1}} u\left(\dot{u} - N_3 u\right) - \right. \\ \left. - \sqrt{\frac{N_1}{N_2}} v\left(\dot{v} + N_3 v\right) - \sqrt{N_1 N_2} \frac{\left(P_\varepsilon, \Omega^3\right)}{\left(\Omega^3, \Lambda_3\right)} \right] + \\ \left. + N_1 \left[\frac{\left(P_\varepsilon, \Omega^1\right)}{\left(\Omega^1, \Lambda_1\right)} - v^2 \right] + N_2 \left[\frac{\left(P_\varepsilon, \Omega^2\right)}{\left(\Omega^2, \Lambda_2\right)} - u^2 \right] \right\}, \qquad (19)$$

where additional conditions are included with the corresponding Lagrange multipliers λ_1, λ_2, λ_3. Infinitesimal shifts ε_β also fulfill their original function of the Lagrange multipliers.

Note that the modified Lagrange function is a homogeneous first-order velocity function, so that the theory remains explicitly reparameterization-invariant.

In the quantum theory, in the representation of a propagator in the form of a functional integral, integration over the Lagrange multipliers gives the product of the corresponding functional delta functions that remove functional integration over group parameters s_α, as well as over additional parameters P_{ε_α}. The dynamics of the latter, considered by us as observables, serves to measure their proper time in the universe. If we do not allow the introduction of new observables and set $P_\varepsilon = 0$, the additional equations of motion for them also disappear. Then the FS integrals are removed by δ-functions from the initial constraints, which have the same meaning as the first integral,

$$\int \frac{dq}{\sqrt{E - U(q)}} = t, \qquad (20)$$

defining time in mechanics.

Any physical degree of freedom can play the role of proper time in this case.

Conclusions

A modification of the covariant dynamical theory with constraint algebra SL2 is inspired by the problem of time in quantum theory. The usual practice in this case of imposing additional gauge conditions violating the covariance has been replaced by a modification of the original theory at the classical level, which does not violate the covariance of the dynamics of the physical degrees of freedom. Additional conditions in it are imposed on the physically unobservable parameters of symmetry transformations – proper time (for each point of the "universe" its own) and the spatial shift between points. However, the modification turns out to be deeper, adding new dynamical variables to the balance of energy and momentum of physical degrees of freedom, which should be considered observable. The dynamics of these observables can serve to measure proper time and spatial shifts, forming the fundamental frame of reference in the universe.

Acknowledgement

The authors thank V.A. Franke for useful discussions.

REFERENCES

1. **Faddeev L.D., Slavnov A.A.,** Gauge fields: An introduction to quantum theory, 2nd edition, Westview Press, 1993.

2. **Fradkin E.S., Vilkovisky G.A.,** Quantization of relativistic systems with constraints, Phys. Lett. B. 55 (2) (1975) 224–226.

3. **Batalin I.A., Vilkovisky G.A.,** Relativistic *S*-matrix of dynamical systems with boson and fermion constraints, Phys. Lett. B. 69 (3) (1977) 309–312.

4. **Henneaux M.,** Hamiltonian form of the path integral for theories with a gauge freedom, Phys. Rep. 126 (1) (1985) 1–66.

5. **Kugo T., Ojima I.,** Local covariant operator formalism of non-Abelian gauge theories and quark confinement problem, Progr. Theor. Phys. Suppl. 66 (February) (1979) 1–130.

6. **Ore F.R., van Nieuwenhuisen P.,** Local {BRST} symmetry and the geometry of gauge-fixing, Nucl. Phys. B. 204 (2) (1982) 317–332.

7. **Govaerts J.,** A note on the Fradkin – Vilkovisky theorem, CERN-TH 5010/88 (1988).

8. **Fock V.A.,** The eigen-time in classical and quantum mechanics, Phys. Zs. Sowjet. 12 (4) (1937) 404–425 (in German).

9. **Schwinger J.,** On gauge invariance and vacuum polarization, Phys. Rev. 82 (5) (1951) 664–679.

10. **Gorobey N., Lukyanenko A.,** Time and observables in covariant quantum theory, arXiv:2001.09003[gr-qc], 2020.

11. **Gorobey N., Lukyanenko A., Goltsev A.,** Feynman propagator for a system of interacting scalar particles in the Fokker theory, arXiv.2002.03607v1[quant-ph], 2020.

12. **Misner C.W., Thorne K. S., Wheeler J.A.,** Gravitation, Princeton University Press, New Jersey, USA, 2017.

13. **Montesions M., Rovelli C., Thiemann T.,** SL (2, R) model with two Hamiltonian constraints, Phys. Rev. D. 60 (4) (1999) 044009.

14. **Green M.B., Schwarz J.H., Witten E.,** Superstring theory, Vol. 1: Introduction, Cambridge University Press, 1987.

Received 03.08.2020, accepted 23.10.2020.

THE AUTHORS

GOROBEY Natalia N.

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University

29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation

n.gorobey@mail.ru

LUKYANENKO Alexander S.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
alex.lukyan@rambler.ru

GOLTSEV Alexander V.
Ioffe Institute of RAS
26, Politekhnicheskaya, St. Petersburg, 195251, Russian Federation
gorobej_nn@spbstu.ru

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Славнов А.А., Фаддеев Л.Д.** Введение в квантовую теорию калибровочных полей. 2-е изд. М.: Наука. 1988. 272 с.

2. **Fradkin E.S., Vilkovisky G.A.** Non-perturbation methods in 2 dimensional quantum field theory // Phys. Lett. B. 1975. Vol. 55. No. 2. Pp. 224–226.

3. **Batalin I.A., Vilkovisky G.A.** Relativistic *S*-matrix of dynamical systems with boson and fermion constraints // Phys. Lett. B. 1977. Vol. 69. No. 3. Pp. 309–312.

4. **Henneaux M.** Hamiltonian form of the path integral for theories with a gauge freedom // Phys. Rep. 1985. Vol. 126. No. 1. Pp. 1–66.

5. **Kugo T., Ojima I.** Local covariant operator formalism of non-Abelian gauge theories and quark confinement problem // Progr. Theor. Phys. Suppl. 1979. Vol. 66. February. Pp. 1–130.

6. **Ore F.R., van Nieuwenhuisen P.** Local {BRST} symmetry and the geometry of gauge-fixing // Nucl. Phys. B. 1982. Vol. 204. No. 2. Pp. 317–332.

7. **Govaerts J.** A note on the Fradkin – Vilkovisky theorem // CERN-TH 5010/88, 1988. 21 p.

8. **Фок В.А.** Собственное время в классической и квантовой механике // Известия АН СССР. Серия физическая. 1937. № 4–5. С. 551–568.

9. **Schwinger J.** On gauge invariance and vacuum polarization // Phys. Rev. 1951. Vol. 82. No. 5. Pp. 664–679.

10. **Gorobey N., Lukyanenko A.** Time and observables in covariant quantum theory// arXiv:2001.09003 [gr-qc] (2020).

11. **Gorobey N., Lukyanenko A.** Feynman propagator for a system of interacting scalar particles in the Fokker theory // arXiv:2002.03607v1 [quant-ph] (2020).

12. **Misner C.W., Thorne K.S., Wheeler J.A.** Gravitation. New Jersey, USA: Princeton University Press, 2017. 1279 p.

13. **Montesions M., Rovelli C., Thiemann T.** SL(2, R) model with two Hamiltonian constraints // Phys. Rev. D. 1999. Vol. 60. No. 4. P. 044009.

14. **Green M.B., Schwarz J.H., Witten E.** Superstring theory. Vol. 1. Introduction. Cambridge: Cambridge University Press, 1987. 469 p.

Статья поступила в редакцию 03.08.2020, принята к публикации 23.10.2020.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

ГОРОБЕЙ Наталья Николаевна – *доктор физико-математических наук, профессор кафедры физики Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
n.gorobey@mail.ru

ЛУКЬЯНЕНКО Александр Сергеевич — *доктор физико-математических наук, профессор кафедры физики Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

alex.lukyan@rambler.ru

ГОЛЬЦЕВ Александр Викторович — *доктор физико-математических наук, профессор, старший научный сотрудник Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26

golysev@ua.pt

DOI: 10.18721/JPM.14112
УДК 519.816

ПРИНЯТИЕ КОЛЛЕКТИВНОГО ЭКСПЕРТНОГО РЕШЕНИЯ НА ОСНОВЕ АЛГОРИТМА НЕЙМАНА – ПИРСОНА

В.И. Антонов[1], **В.В. Гарбарук**[2], **В.Н. Фоменко**[2]

[1] Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация;

[2] Петербургский государственный университет путей сообщения Императора Александра I, Санкт-Петербург, Российская Федерация

В статье рассмотрена возможность обработки результатов голосования в случае коллектива экспертов с различной эффективностью оценки ситуации. Предполагалось, что эксперты должны решить вопрос о наличии или отсутствии у пациента конкретного заболевания. Требовалось наиболее разумно объединить голоса отдельных экспертов в коллективное решение консилиума. В основу построения такого алгоритма был положен метод минимизации вероятности ошибки второго рода при фиксированной вероятности ошибки первого рода (алгоритм Неймана – Пирсона). Показано, что совет, состоящий из экспертов с различной квалификацией, может с большой вероятностью приходить к правильному выводу.

Ключевые слова: коллектив экспертов, эффективность оценки, метод Неймана и Пирсона

Ссылка при цитировании: Антонов В.И., Гарбарук В.В., Фоменко В.Н. Принятие коллективного экспертного решения на основе алгоритма Неймана – Пирсона // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 155–163. DOI: 10.18721/JPM.14112

MAKING A COLLECTIVE EXPERT DECISION BASED ON THE NEUMANN – PEARSON ALGORITHM

V.I. Antonov[1], **V.V. Garbaruk**[2], **V.N. Fomenko**[2]

[1] Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, St. Petersburg, Russian Federation;

[2] Petersburg State Transport University, St. Petersburg, Russian Federation

In the article, the possibility of processing voting results in the case of a team of experts with different efficiency in assessing the situation has been considered. The experts were expected to decide whether or not a patient was suffering from a specific disease. The most intelligent combination of the individual expert's votes into a collective council's decision was required. Our algorithm was based on the Neumann – Pearson principle of minimizing the type 2 error probability at a fixed type 1 error probability. The team of experts with different qualifications was shown to be able to draw a correct conclusion with a high probability.

Keywords: team of experts, assessment efficiency, Neumann and Pearson method

Citation: Antonov V.I., Garbaruk V.V., Fomenko V.N., Making a collective expert decision based on the Neumann – Pearson algorithm, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 155–163. DOI: 10.18721/JPM.14112

Введение

Для того чтобы принять сложное и нестандартное решение, как правило, запрашивается мнение группы экспертов. В случае выбора сразу нескольких решений для упорядочения возможных вариантов, предложенных экспертами, используются методы «парных сравнений», «ранжирования» и другие [1, 2]. При выборе одного решения обычно считается, что все эксперты одинаково профессиональны и принятым считается вариант, получивший наибольшее число голосов. Особенности и недостатки такой обработки результатов голосования рассматривались во многих работах [3 – 8].

В данной статье рассматривается возможность обработки результатов голосования в случае коллектива экспертов, обладающих различной эффективностью при оценке ситуации. При этом предполагается, что эксперты должны решить, какую из двух возможностей следует выбрать. Такая альтернатива встречается, например, в ходе врачебного консилиума, когда решается вопрос о диагностике конкретного заболевания. Эксперт пытается, используя свой опыт и имеющуюся у него информацию о конкретном пациенте, распознать, с какой из двух возможных ситуаций он в действительности имеет дело: страдает пациент данным заболеванием или нет.

Необходимость подобного выбора возникает не только в медицине. Опыт экспертов нужен в консалтинговых компаниях [9], научных и производственных советах [10, 11]. Бинарный выбор имеет место, например, при назначении претендента на должность руководителя большого предприятия, когда решается вопрос, имеет ли в действительности данный кандидат все необходимые качества руководителя и будет ли полезен в будущем. Также эксперты могут участвовать в решении вопроса о целесообразности революционного реформирования предприятия, об участии в конкретном инвестиционном проекте и т. п.

Применение оптимального алгоритма Неймана – Пирсона для принятия коллективного решения

Предположим, что экспертный совет состоит из G однородных групп с количеством экспертов в каждой группе N_g. Считается, что все эксперты принимают решение независимо друг от друга, в том числе и внутри одной группы. Однородные группы могут формироваться на основе их предыдущей работы в других консилиумах. Этими группами могут быть разные отделения медицинского учреждения, в каждом из которых проводится голосование. Сотрудники одного отделения могут иметь схожие взгляды на симптомы болезни.

Обозначим $p_A^{(g)}$ вероятность того, что врач-эксперт группы g принимает здорового пациента за здорового, а $p_B^{(g)}$ – вероятность того, что врач-эксперт принимает больного пациента за здорового. Это условные вероятности того, что эксперт говорит «здоров» в ситуациях A и B, соответственно. Эксперты объединены в одну группу g, потому что у них одинаковые значения вероятностей $p_A^{(g)}$ и $p_B^{(g)}$. Тогда вероятности того, что эксперт прав, равны $p_A^{(g)}$ и $1-p_B^{(g)}$. Вероятности правильного выбора могут быть равны или удовлетворять как неравенству $p_A^{(g)} > 1 - p_B^{(g)}$, так и неравенству $p_A^{(g)} < 1 - p_B^{(g)}$. Последнее неравенство в медицине, например, характеризует врача, склонного к гипердиагностике, т. е. ошибочному заключению о наличии у пациента болезни.

Далее число голосов в пользу варианта A в группе g обозначим через n_g. Объединим эти величины в вектор голосования

$$\mathbf{n} = \left(n_1, n_2, \ldots, n_G\right).$$

Число разных исходов голосования равно

$$M = \prod_{g=1}^{G}\left(N_g + 1\right).$$

Если учесть, что эксперты принимают решение независимо друг от друга, то вероятности исхода **n** в вариантах A и B выражаются как

$$P_A(\mathbf{n}) = \prod_{g=1}^{G} C_{N_g}^{n_g} \left(p_A^{(g)}\right)^{n_g} \left(1 - p_A^{(g)}\right)^{N_g - n_g}, \quad (1)$$

$$P_B(\mathbf{n}) = \prod_{g=1}^{G} C_{N_g}^{n_g} \left(p_B^{(g)}\right)^{n_g} \left(1 - p_B^{(g)}\right)^{N_g - n_g}. \quad (2)$$

Для построения оптимального критерия Неймана – Пирсона [11, 12] ключевую роль играет статистика:

$$K(\mathbf{n}) = \frac{P_B(\mathbf{n})}{P_A(\mathbf{n})}. \quad (3)$$

Упорядочим возможные исходы голосования в порядке возрастания $K(\mathbf{n})$:

$$K(\mathbf{n}_1) \le K(\mathbf{n}_2) \le \ldots \le K(\mathbf{n}_M). \quad (4)$$

Введем сечение последовательности (4) значением

$$K_0 = K\left(\mathbf{n}_{k_0}\right),$$

где k_0 – порядковый номер значения K_0 в последовательности (4).

Конкретный выбор значения k_0 обсуждается ниже. Коллективное решение, согласно критерию Неймана – Пирсона, принимается в зависимости от того, какое из нижеприведенных условий выполняется для голосования $\mathbf{n} = \mathbf{n}_k$:

$$k < k_0, \quad (5)$$

$$k = k_0, \quad (6)$$

$$k > k_0. \quad (7)$$

В случае (5) гипотеза A принимается, т. е. согласно принятой в математической статистике терминологии, совокупность таких векторов голосования $\mathbf{n}_k$ входит в допустимую область. В случае (7) гипотеза отвергается ($\mathbf{n}_k$ принадлежат критической области). В пограничном случае (6) принятие решения осуществляется статистически: гипотеза A отвергается с вероятностью ε, и принимается с вероятностью 1 – ε.

Для такого алгоритма вероятность ошибки первого рода равна

$$\alpha = \sum_{k=k_0+1}^{M} P_A(\mathbf{n}_k) + P_A\left(\mathbf{n}_{k_0}\right)\varepsilon. \quad (8)$$

Вероятность ошибки второго рода дается выражением

$$\beta = \sum_{k=1}^{k_0-1} P_B(\mathbf{n}_k) + P_B\left(\mathbf{n}_{k_0}\right)(1-\varepsilon). \quad (9)$$

В алгоритме Неймана – Пирсона вероятность статистической ошибки первого рода может задаваться произвольно, а алгоритм обеспечивает минимальность вероятности ошибки второго рода при выбранном значении вероятности ошибки первого рода. Далее параметры k_0 и ε выбираются из условия, согласно которому вероятность ошибки первого рода α принимала бы заданное значение. Из соотношения (8) получаем:

$$\begin{aligned} &k_0 = \max k, \quad \sum_{l=k}^{M} P_A(\mathbf{n}_l) \ge \alpha; \\ &\varepsilon = 1 - \frac{\sum_{l=k_0}^{M} P_A(\mathbf{n}_l) - \alpha}{P_A\left(\mathbf{n}_{k_0}\right)}. \end{aligned} \quad (10)$$

Поясним, в чем состоит оптимальность критерия Неймана – Пирсона. Рассмотрим некоторый произвольный критерий принятия коллективного решения, определяемый функцией

$$\varphi_1(\mathbf{n}_k) \quad \left(0 \le \varphi_1(\mathbf{n}_k) \le 1\right). \quad (11)$$

Эта функция равна вероятности, с которой гипотеза A отвергается и, соответственно, с вероятностью 1 – $\varphi_1(\mathbf{n}_k)$ принимается при исходе голосования $\mathbf{n}_k$. Соответствующая функция для оптимального критерия, согласно формулам (5) – (7), имеет вид

$$\varphi(\mathbf{n}_k) = \begin{cases} 0, & k < k_0; \\ \varepsilon, & k = k_0; \\ 1, & k > k_0. \end{cases}$$

Пусть α_1 и β_1 – вероятности ошибок первого и второго рода для критерия (11). Критерий Неймана – Пирсона оптимален в том смысле, что при любом выборе функции (11) выполняется условие

$$\alpha_1 \leq \alpha \Rightarrow \beta_1 \geq \beta.$$

Это означает, что исключается случай, когда у какого-либо критерия при той же или меньшей вероятности ошибки первого рода вероятность ошибки второго рода также была бы меньше, чем у оптимального критерия.

Оптимальность можно сформулировать и более наглядно, если ввести понятие сравнимых по точности критериев. Будем считать, что два критерия сравнимы, если вероятности ошибок первого и второго рода одного из них отклоняются от соответствующих вероятностей другого критерия в одну сторону [13, 14]. Естественно назвать критерий с меньшими вероятностями ошибок более точным. В этих терминах оптимальный критерий более точен, чем любой сравнимый с ним критерий, или же оба критерия имеют одинаковую точность.

Формулы (10) и (9) позволяют построить функцию

$$\beta = \beta(\alpha).$$

Выбор вероятности ошибки первого рода α произволен, и для каждого ее значения мы получим минимально возможное значение вероятности ошибки второго рода, применяя алгоритм Неймана – Пирсона.

Если известна априорная вероятность варианта A (обозначим ее P_A), то можно поставить следующую задачу: так выбрать α, чтобы получить минимальную вероятность полной ошибки принятия решения

$$\gamma(\alpha) = P_A\alpha + (1 - P_A)\beta(\alpha). \qquad (12)$$

Это значение α_{opt} определяется формулой

$$\alpha_{opt} = \arg\min_{\alpha} \gamma(\alpha). \qquad (13)$$

Пример расчета по оптимальному алгоритму

Приведем конкретный пример вычислений, основанных на оптимальном критерии. Рассмотрим врачебный консилиум, состоящий из двух групп. Параметры консилиума даны в табл. 1. Результаты применения оптимального критерия к процессу принятия этим консилиумом коллективного решения отображены в табл. 2.

Во второй таблице представлены всевозможные исходы голосования, ранжированные по величине (3). В крайнем правом столбце даны значения этой величины. Во втором и третьем столбцах (слева) дается количество голосов в пользу варианта A в каждой из двух групп: величины n_1 и n_2, соответственно.

В четвертом столбце слева приведена вероятность соответствующего исхода голосования, в предположении, что экспертам предъявлен вариант A. В пятом столбце слева – кумулятивная вероятность: вероятность данного исхода или любого другого (он расположен ниже). Второй и третий столбцы справа содержат аналогичную информацию, но эксперты оценивают вариант B. Кроме того, кумулятивная вероятность вычисляется теперь для исходов голосования, расположенных выше данного. Кумулятивные вероятности служат для вычисления вероятностей статистических ошибок (см. текст ниже).

Предположим, что приведенная в табл. 2 последовательность итогов голосования произвольно разбита на верхнюю и нижнюю части. В иллюстрирующей таблице разбиение проходит по состоянию с порядковым номером $k = k_0 = 4$. Согласно оптимальному критерию, состояния, расположенные ниже границы, т. е. числа строки, выделенные жирным красным шрифтом, принадлежат критической области, а состояния выше границы входят в допустимую область. Если результат голосования попадает в критическую область, то принимается вариант B. Если же результат голосования находится в допустимой области, то решение принимается в пользу варианта A. Если при голосовании

Таблица 1

Параметры врачебного консилиума

Номер группы	Численность, чел.	p_A	p_B
1	3	0,90	0,20
2	2	0,95	0,10

Представлены вероятности того, что врач-эксперт принимает здорового человека за здорового (p_A) и больного пациента за здорового (p_B).

Таблица 2

Итоги голосования консилиума и их вероятностные параметры

Пор. номер k	Вектор голосования за вариант A $\mathbf{n} = (n_1, n_2)$		Вариант A		Вариант B		$K(\mathbf{n})$
			$P_k^{(A)}$	$\sum_k^{(A)}$	$P_k^{(B)}$	$\sum_k^{(B)}$	
1	3	2	0,658	1,00	0,00008	0,00008	0,000122
2	2	2	0,219	0,342	0,00096	0,00104	0,00438
3	3	1	0,0693	0,123	0,00144	0,00248	0,0208
4	**1**	**2**	**0,0244**	**0,0535**	**0,00384**	**0,00632**	**0,158**
5	2	1	0,0231	0,0291	0,0173	0,0236	0,749
6	3	0	0,00182	0,00606	0,00648	0,0301	3,56
7	0	2	0,000902	0,00424	0,00512	0,0352	5,67
8	1	1	0,00257	0,00334	0,06912	0,104	26,9
9	2	0	0,000608	0,000773	0,0778	0,182	128
10	0	1	0,000095	0,000165	0,0922	0,274	970
11	1	0	0,0000675	0,00007	0,311	0,585	4610
12	0	0	0,0000025	0,0000025	0,0415	1,00	166000

реализуется граничный случай, то вариант B принимается с вероятностью ε и делается выбор в пользу варианта A с вероятностью $1 - \varepsilon$.

Таким образом, граница статистически размывается: с вероятностью ε она входит в критическую область, а с вероятностью $1 - \varepsilon$ она входит в допустимую. Из изложенного выше ясно, что после выбора величин

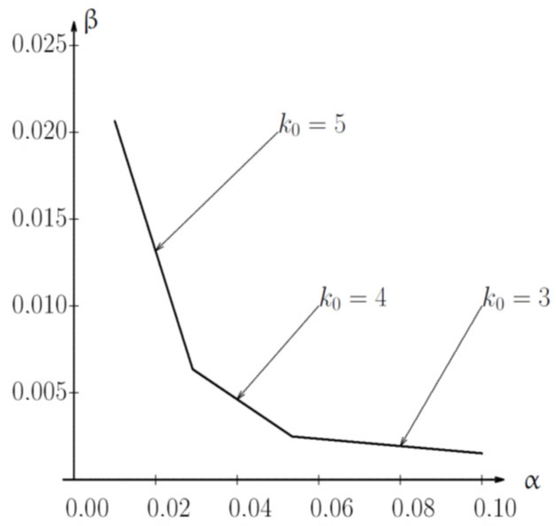
$$k_0 \text{ и } \varepsilon \left(1 \le k_0 \le 12,\, 0 < \varepsilon \le 1\right)$$

вероятности ошибок первого и второго рода равны:

$$\alpha = \sum\nolimits_{k_0+1}^{(A)} + \varepsilon \cdot P_{k_0}^{(A)},$$
$$\beta = \sum\nolimits_{k_0-1}^{(B)} + \left(1-\varepsilon\right) \cdot P_{k_0}^{(B)}, \quad (14)$$

что согласуется с формулами (8) и (9).

На рисунке приведен фрагмент графика функции β(α) для практически интересных значений α и параметрах модели, приведенных в табл. 1. Отметим, что зависимость β от α является кусочно-линейной. Это видно из формул (14). Действительно, при непрерывном увеличении α, сначала растет величина ε при неизменном значении k_0. Затем, когда ε достигает своего максимального значения



Пример зависимости вероятности ошибки второго рода от вероятности ошибки первого рода (параметры модели даны в табл. 1)

$\varepsilon = 1$, величина k_0 уменьшается на единицу, кумулятивная вероятность $\sum_{k_0+1}^{(A)}$ увеличивается на $P_{k_0}^{(A)}$, а величина ε становится равной нулю. При дальнейшем росте α значение ε снова увеличивается, и весь процесс повторяется. Из второй формулы (14) видно, что величина β линейно зависит от α. Таким образом, на участках изменения α, когда k_0 фиксировано, β линейно зависит от α. На рисунке показаны три таких участка линейной зависимости. В вершинах ломаной значение $\varepsilon = 1$, что означает исчезновение стохастического элемента оптимального критерия при таких значениях α.

Из того, что функция β(α) – кусочно-линейная, вытекает, что и вероятность полной ошибки γ(α) обладает тем же свойством (см. формулу (12)). Но тогда задача минимизации функции γ(α) (см. формулу (13)) в качестве своего решения имеет значение α, которому соответствует одна из вершин. В этих вершинах $\varepsilon = 1$ и критерий не является стохастическим. Таким образом, в рамках довольно общей постановки задачи критерий Неймана – Пирсона не содержит рандомизированного элемента. Если учесть, что в случае непрерывного распределения рандомизация отсутствует в принципе [11], то можно констатировать, что оптимальный критерий на практике часто оказывается детерминированным.

Изложенный в данной работе метод позволяет рационально объединить голоса отдельных врачей-экспертов в общее заключение консилиума. Этот алгоритм принятия коллективного решения является оптимальным в описанном выше смысле. В предыдущем параграфе показано, что даже совет, состоящий из экспертов различной квалификации, может с большой вероятностью приходить к правильному выводу. Эта ситуация сродни уменьшению погрешности измерений за счет их независимости и массовости. Аналогично и в случае принятия коллективного решения принципиально важно, чтобы эксперты, делая свое заключение, были не зависимы друг от друга. Это условие может нарушаться в жизни по разным причинам. Например, во время коллективного обсуждения диагноза может проявиться стремление каждого специалиста к унификации мнений членов совета. Возможно непреднамеренное давление отдельных экспертов (например, своим авторитетом) на других специалистов. Все это может как увеличивать, так и уменьшать вероятность правильного коллективного решения.

Другой возможной причиной нарушения независимости суждений экспертов может быть какая-либо распространенная среди специалистов данной группы ошибочная установка. Это приведет к возникновению статистической зависимости (корреляции) между мнениями отдельных экспертов, хотя в этом случае отсутствует непосредственное взаимодействие между ними.

Отметим, что независимость принятия решения экспертами не является непременным условием применения оптимального критерия. В случае присутствия корреляции, формулы (1) и (2) теряют силу. Однако вместо них соответствующие формулы можно записать и при наличии корреляции, если имеется достаточно информации о статистической зависимости.

Заключение

Исследована возможность обработки исхода голосования членов экспертной группы, уровень квалификация которых различен. В качестве примера рассмотрена ситуация в медицинской среде, когда консилиум призван решить вопрос о наличии у пациента предполагаемого заболевания. Требовалось построить алгоритм решения задачи об объединении голосов отдельных экспертов в коллективное решение. За основу построения алгоритма был взят принцип Неймана – Пирсона, согласно которому минимизировалась вероятность ошибки второго рода при фиксированной вероятности ошибки первого рода. Иллюстрация построенного алгоритма была проведена на примере консилиума, состоящего из двух однородных групп экспертов, включающих 2 и 3 специалиста, соответственно. Численным расчетом продемонстрировано, что совет, состоящий из экспертов с различной квалификацией, может с большой вероятностью приходить к правильному выводу. Рассмотренные методы рекомендуется использовать как при обучении и подготовке медицинского персонала [15, 16], так и для аналогичных ситуаций, требующих решения экспертных групп.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **David H.A.** The method of paired comparisons. 2nd edition. London: Lubrecht & Cramer, Ltd., 1969. 124 p.
2. **Kendall M.G.** Ranks of correlation methods. 4th edition. London: Charles Griffin and Co., 1970. 202 p.
3. **Gibbard A.** Manipulation of voting schemes: general result // Econometrica. 1973. Vol. 41. No. 4. Pp. 587–601.
4. **Тюшняков В.Н., Челашов Д.А.** Исследование парадокса циклического голосования при принятии коллективных решений // Современные наукоемкие технологии. 2014. № 7 (часть 3). С. 91–92.
5. **Малышев В.А., Чеботарев П.Ю.** Об оптимальном пороге притязаний группы при голосовании в стохастической среде // Автоматика и телемеханика. 2017. № 6. С. 157–172.
6. **Булатникова И.Н., Федорова О.И., Чуян С.Г.** Принятие решений путем голосования // Инновационная наука. 2015. Т. 3. № 4 (часть 3). С. 169–172.
7. **Вольский В.И., Лезина З.М.** Голосование в малых группах. Процедуры и методы сравнительного анализа. М.: Наука, 2001. 192 с.
8. **Arrow K.J.** Social choice and individual values. New York: John Wiley & Sons, Inc., 1963. 90 p.
9. **Нестеренко И.Н., Сараджишвили В.М., Зайцева Ю.Ю.** Управленческий консалтинг: проблемы и перспективы развития на отечественном рынке // Молодой ученый. 2019. Т. 260. № 22. С. 560–562.
10. **Коростелева О.Н.** Оценка эффективности экспертных групп при проведении экспертизы научно-квалификационных работ // Социология науки и технологий. 2017. Т. 8. № 3. С. 89–98.
11. **Neyman J., Pearson E.S.** On the problem of the most efficient tests of statistical hypotheses // Philosophical Transactions of Royal Society of London. A. 1933. Vol. 231. No. 694–706. Pp. 289–337.
12. **Севастьянов Б.А.** Курс теории вероятностей и математической статистики. М.: Наука, 1982. 256 с.
13. **Натан А.А., Гуз С.А., Горбачев О.Г., Гасников А.В., Черноусова Е.О.** Математическая статистика. Изд. 3-е, испр. и доп. М: Изд-во МФТИ, 2011. 32 с.
14. **Сморкалова В.М.** Задачи проверки статистических гипотез. Нижний Новгород: Нижегородский госуниверситет, 2015. 23 с.
15. **Causer J., Barach P., Williams A.M.** Expertise in medicine: using the expert performance approach to improve simulation training // Medical Education. 2014. Vol. 48. No. 2. Pp. 115–123.
16. **Altman D.G., Goodman S.N., Schroter S.** How statistical expertise is used in medical research // Journal of the American Medical Association. 2002. Vol. 287. No. 21. Pp. 2817–2820.

Статья поступила в редакцию 21.12.2020, принята к публикации 01.02.2021.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

АНТОНОВ Валерий Иванович – *доктор технических наук, заведующий кафедрой высшей математики Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
antonovvi@mail.ru

ГАРБАРУК Виктор Владимирович – *кандидат технических наук, профессор кафедры высшей математики Петербургского государственного университета путей сообщения Императора Александра I, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

190031, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Московский пр., 9
vigarb@mail.ru

ФОМЕНКО Виктор Николаевич – *доктор физико-математических наук, профессор кафедры высшей математики Петербургского государственного университета путей сообщения Императора Александра I, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

190031, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Московский пр., 9
vfomenko1943@gmail.com

REFERENCES

1. **David H.A.,** The method of paired comparisons, 2nd edition, Lubrecht & Cramer, Ltd., London, 1969.

2. **Kendall M.G.,** Ranks of correlation methods, 4th edition, Charles Griffin and Co., London, 1970.

3. **Gibbard A.,** Manipulation of voting schemes: general result, Econometrica. 41 (4) (1973) 587–601.

4. **Tyushnyakov V.N., Chelashov D.A.,** Issledovaniye paradoksa tsiklicheskogo golosovaniya pri prinyatii kollektivnykh resheniy [Investigation of the paradox of cyclic voting in collective decision-making], Modern Problems of Science and Education. Surgery. (7-3) (2014) 91–92 (in Russian).

5. **Malyshev V.A., Chebotarev P.Yu.,** On optimal group claims at voting in a stochastic environment, Avtomatika i Telemekhanika. (6) (2017) 157–172 (in Russian).

6. **Bulatnikova I.N., Fedorova O.I., Chuyan S.G.,** Prinyatiye resheniya putyom golosovaniya [Decision-making by voting], Innovation Science. 3 (4-3) (2015) 169–172 (in Russian).

7. **Volsky V.I., Lezina Z.M.,** Golosovaniye v malykch gruppakh. Protsedury i metody sravnitelnogo analiza [Small group voting. Comparative analysis procedures and methods]. Nauka, Moscow, 2001 (in Russian).

8. **Arrow K.J.,** Social choice and individual values, John Wiley & Sons, Inc., New York,1963.

9. **Nesterenko I.N., Saradzhishvili V.M., Zaitseva Yu.Yu.,** Upravlencheskiy konsalting: problemy i perspektivy razvitiya na otechestvennom rynke [Management consulting: problems and development prospects in the domestic market], Young Scientist. 260 (22) (2019) 560–562 (in Russian).

10. **Korosteleva O.N.,** The assessment of efficiency of expert groups at conducting examination of scientific qualification works, Sociology of Science & Technology. 8 (3) (2017) 89–98 (in Russian).

11. **Neyman J., Pearson E.S.,** On the problem of the most efficient tests of statistical hypotheses, Philosophical Transactions of Royal Sociery of London. A. 231 (694–706) (1933) 289–337.

12. **Sevastianov B.A.,** Kurs teorii veroyatnostey i matematicheskoy statistiki [The course of proba-

bility theory and mathematical statistics], Nauka, Moscow, 1982 (in Russian).

13. **Nathan A.A., Guz S.A., Gorbachev O.G., et al.,** Matematicheskaya statistika, 3-ye izdaniye [Mathematical statistics, 3rd edition], MIPT Publishing, Moscow, 2011 (in Russian).

14. **Smorkalova V.M.,** Zadachy proverki statiaticheskikh gipotez [Tasks of testing the statistical hypotheses], Nizhny Novgorod State University, Nizhny Novgorod, 2015 (in Russian).

15. **Causer J., Barach P., Williams A.M.,** Expertise in medicine: using the expert performance approach to improve simulation training, Medical Education. 48 (2) (2014) 115–123.

16. **Altman D.G., Goodman S.N., Schroter S.,** How statistical expertise is used in medical research, Journal of the American Medical Association. 2002. 287 (21) (2002) 2817–2820.

Received 21.12.2020, accepted 01.02.2021.

THE AUTHORS

ANTONOV Valerii I.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation
antonovvi@mail.ru

GARBARUK Victor V.
Petersburg State Transport University
9 Moskovsky Ave., St. Petersburg, 190031, Russian Federation
vigarb@mail.ru

FOMENKO Viktor N.
Petersburg State Transport University
9 Moskovsky Ave., St. Petersburg, 190031, Russian Federation
vfomenko1943@gmail.com

DOI: 10.18721/JPM.14113
УДК 517.938:070

МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ИНФОРМАЦИОННОГО ПРОТИВОБОРСТВА

С.В. Тимофеев, А.В. Баенхаева

Байкальский государственный университет,
г. Иркутск, Российская Федерация

В статье излагается продолжение исследований построенной ранее базовой математической модели распространения в обществе новой информации. Данная модель представляет собой автономную систему четырех обыкновенных дифференциальных уравнений с квадратичной нелинейностью в правых частях. В пространстве параметров системы выделены две важные области, представляющие интерес для приложений. В определенном смысле в этих областях реализуются два диаметрально противоположных и принципиально разных сценария распространения новой информации в обществе. С помощью качественных методов теории дифференциальных уравнений в каждом случае изучены глобальные свойства фазового портрета построенной динамической системы. Даны содержательная и графическая интерпретации полученных результатов.

Ключевые слова: дифференциальное уравнение, стационарное решение системы, инвариантное множество, асимптотическая устойчивость

Ссылка при цитировании: Тимофеев С.В., Баенхаева А.В. Математическое моделирование информационного противоборства // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 164–176. DOI: 10.18721/JPM.14113

MATHEMATICAL MODELING OF INFORMATION CONFRONTATION

S.V. Timofeev, A.V. Baenkhaeva

Baikal State University,
Irkutsk, Russian Federation

The article continues our studies in the previously constructed mathematical model of dissemination of new information in the society. The model is a system of four ordinary differential equations with quadratic nonlinearity in the right parts. Two fundamental domains have been taken in the parameter space of the model and they may be of interest in application. In some sense, these domains provide two diametrically opposite and essentially different scenarios of new information dissemination. In every case, the global properties of the phase pattern of the constructed dynamic system were investigated using qualitative methods of the theory of differential equations. Both conceptual and geometric interpretations of the obtained results were given.

Keywords: differential equation, stationary solution of system, invariant set, asymptotic stability

Citation: Timofeev S.V., Baenkhaeva A.V., Mathematical modeling of information confrontation, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 164–176. DOI: 10.18721/JPM.14113

Введение

В работе [1] была представлена построенная нами математическая модель распространения новой информации в обществе:

$$\frac{dN}{dt} = \beta N - \gamma AN,$$

$$\frac{dC}{dt} = \alpha AN - \mu\left(C - C_*\right), \qquad (1)$$

$$\frac{dA}{dt} = \rho C - \eta\gamma AN - \lambda A,$$

$$\frac{di}{dt} = \sigma N - \omega i.$$

При моделировании мы исходили из гипотезы, что ключевыми факторами продвижения информационных потоков выступают следующие величины, зависящие от времени t:

$N(t)$ (от *англ.* News) – количественная характеристика новостной информации, соответствующая продвижению новых взглядов в информационном пространстве;

$C(t)$ (от *англ.* Censorship) – число органов цензуры с определенной ресурсной базой, целью которых является сохранение ранее принятых концепций;

$A(t)$ (от *англ.* Alternative view) – количественная характеристика информационного потока (возможно, генерируемая по инициативе органов цензуры), противопоставленная распространению новой концепции в информационном пространстве;

$i(t)$ (от *англ.* index) – показатель доли населения, лояльно относящейся к новым идеям, появляющимся в СМИ на момент времени;

$$i = 1 - \frac{I^*}{I},$$

где I, %, соответствует полному приятию в обществе устоявшихся положений до начала наблюдений; I^*, %, – соответствующая характеристика приятия устоявшихся положений при распространении в СМИ новых взглядов.

Параметры $\beta \geq 0$, $\gamma \geq 0$ соответственно показывают мощность распространения новой информации через СМИ и вероятностную характеристику нейтрализации эффекта от полученных сообщений через изложение противоположной точки зрения. В свою очередь, коэффициент $\alpha \geq 0$ отражает интенсивность реакции на силу противоборства противоположных точек зрения, параметр $\mu > 0$, обратно пропорциональный времени работы дополнительно образованных органов (будем предполагать, что в обществе всегда есть специальный ресурс в количестве C_* для защиты прежней концепции).

Средняя скорость появления новостей из одного органа информации C будет характеризовать параметр $\rho \geq 0$, а $\eta \geq 0$ – количество информации A, направленное на нейтрализацию влияния сообщений N. Коэффициент $\lambda > 0$ обратно пропорционален времени забывания информации A.

Параметры $\sigma > 0$, $\omega \geq 0$ характеризуют соответственно темп приятия новой идеи и возврат в силу инерции мышления к прежней концепции.

Безусловно, предложенная математическая модель не учитывает всех тонкостей и деталей при описании процесса распространения новой информации в обществе посредством СМИ. Однако этот обобщенный вид модели позволяет связать в систему основные факторы, выделенные для этого действия, и помогает глубже понять процесс информационного противоборства.

Ранее, с помощью методов, изложенных в работах [2 – 5], было показано, что система (1) обладает характеристиками, позволяющими исследовать глобальные свойства ее решений: единственности, непрерывной зависимости решений от параметров, неограниченной их продолжимости. Также для этой системы доказана инвариантность множества

$$R_+^4 = \left\{\left(N, C, A, i\right) \in R^4 : N \geq 0, C \geq 0, A \geq 0, i \geq 0\right\}.$$

При этом были найдены два стационарных решения, имеющие достаточно четкую интерпретацию [1]:

$$X_{1st} = \left(N_{1st}, C_{1st}, A_{1st}, i_{1st}\right) = \\ = \left(0, C_*, \rho C_*/\lambda, 0\right),$$

$$X_{2st} = \left(N_{2st}, C_{2st}, A_{2st}, i_{2st}\right),$$

где

$$N_{2st} = \frac{\mu\left(\lambda\beta - \gamma\rho C_*\right)}{\beta(\alpha\rho - \mu\eta\gamma)},$$
$$C_{2st} = \frac{\alpha\lambda\beta - \eta\mu\gamma^2 C_*}{\gamma\left(\alpha\rho - \mu\eta\gamma\right)},$$

$$A_{2st} = \frac{\beta}{\gamma},$$
$$i_{2st} = \frac{\sigma\mu\left(\lambda\beta - \gamma\rho C_*\right)}{\omega\beta\left(\alpha\rho - \mu\eta\gamma\right)}.$$

В пространстве параметров системы были выделены две области, в которых $X_{ist} \in R_+^4$, $i = 1,2$, но при этом обладающие существенно разными свойствами:

$$\Omega_1 : \begin{cases} \gamma\rho C_* > \lambda\beta \\ \mu\eta\gamma > \alpha\rho \end{cases}, \quad \Omega_2 : \begin{cases} \gamma\rho C_* < \lambda\beta \\ \mu\eta\gamma < \alpha\rho \end{cases}.$$

Путем использования качественных методов исследования дифференциальных уравнений, были изучены глобальные свойства фазового портрета построенной динамической системы. Это позволило выделить несколько возможных сценариев распространения новой информации в обществе.

В данной работе исследуются свойства решений системы (1) в областях параметров

$$\Lambda_1 : \begin{cases} \gamma\rho C_* < \lambda\beta \\ \mu\eta\gamma > \alpha\rho \end{cases},$$

$$\Lambda_2 : \begin{cases} \gamma\rho C_* > \lambda\beta \\ \mu\eta\gamma < \alpha\rho \end{cases},$$

которые представляют отдельный интерес для приложений.

В этих областях на множестве R_+^4 содержится только одно стационарное решение:

$$X_{1st} = \left(N_{1st}, C_{1st}, A_{1st}, i_{1st}\right) = \\ = \left(0, C_*, \rho C_*/\lambda, 0\right).$$

Перед исследованием следует сделать замечание. Поскольку в системе (1) переменная $i(t)$ содержится только в последнем уравнении, дальнейшее исследование можно проводить для системы меньшей размерности, которую целесообразно представить в более удобном для изучения виде:

$$\begin{aligned} \frac{dC}{dt} &= \alpha AN - \mu\left(C - C_*\right), \\ \frac{dA}{dt} &= \rho C - \left(\lambda + \eta\gamma N\right)A, \\ \frac{dN}{dt} &= \left(\beta - \gamma A\right)N. \end{aligned} \tag{2}$$

Полученные результаты затем можно легко распространить на переменную $i(t)$.

Легко показать, что множество

$$R_+^3 = \\ = \left\{\left(C, A, N\right) \in R^3 : C \geq 0,\ A \geq 0, N \geq 0\right\}$$

для данной системы инвариантно и содержит один стационар

$$X_{st} = \left(C_{st}, A_{st}, N_{st}\right) = \\ = \left(C_*, \rho C_*/\lambda, 0\right).$$

Отметим, что в Λ_1 этот стационар является неустойчивым, а в Λ_2 – устойчивым.

Содержательный смысл стационара X_{st} сформулирован в работе [1] как преобладающая в обществе система взглядов, для поддержки которой административный ресурс в количестве C_* задействует в СМИ достаточное (с точки зрения этого ресурса) количество информации $\rho C_*/\lambda$.

Ввиду автономности системы (2), начальные условия можно записать в следующем виде:

$$C(0) = C_0 \geq 0,$$
$$A(0) = A_0 \geq 0, N(0) = N_0 \geq 0. \tag{3}$$

Анализ модели (2), (3) в области параметров Λ_1

Лучше понять поведение решений трехмерной системы (2), (3) в области Λ_1 поможет редуцированная двумерная система дифференциальных уравнений

$$\frac{dA}{dt} = \rho C - (\lambda + \eta\gamma N) A,$$
$$\frac{dN}{dt} = (\beta - \gamma A) N, \tag{4}$$

полученная из системы (2) при $\alpha = 0$ и $C(t) = C_*$ при $t \geq 0$.

Необходимо пояснить, что система (4) описывает ситуацию, при которой органы информационной защиты, в силу различных причин, не реагируют на «вброс» в средства массовой информации сообщений, идущих вразрез с принятыми в обществе взглядами.

Система (4) в области параметров Λ_1 имеет в инвариантном множестве

$$R_+^2 = \left\{ (A, N) \in R^2 : A \geq 0,\ N \geq 0 \right\}$$

только одно стационарное решение:

$$X_{st} = (A_{st}, N_{st}) = (\rho C_* / \lambda, 0),$$

которое является седлом.

Известные приемы качественного анализа двумерных систем дифференциальных уравнений [6] позволяют построить фазовый портрет и изучить поведение траекторий системы (4) (рис. 1). Как видно из рисунка, все траектории системы (4) с начальными условиями

$$A(0) = A_0 \geq 0,\ N(0) = N_0 > 0$$

при $t \to +\infty$ имеют одинаковое поведение:

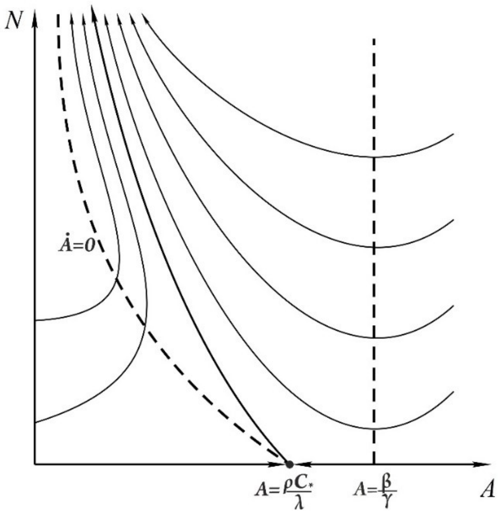


Рис. 1. Фазовый портрет системы (4) на множестве R_+^2

$$A(t) \to 0, N(t) \to +\infty.$$

Покажем, что в R_+^3 система (2), (3) имеет качественно сходный фазовый портрет.

Пусть

$$R^+ = \left\{ (C, A, N) \in R_+^3 : N > 0 \right\},$$

$$\partial R^+ = \left\{ (C, A, N) \in R_+^3 : N = 0 \right\}.$$

Обозначим для произвольного решения системы (2), (3), а именно для

$$X(t) = (C(t), A(t), N(t)),$$

как $\Lambda^+(X)$ – ω-предельное множество данного решения [7].

Лемма. *Для всех траекторий системы (2), начинающихся на множестве R^+, множество $\Lambda^+ \cap \partial R^+$ является пустым.*

Доказательство. Множество ∂R^+ инвариантно в силу системы (2), (3). Действительно, если

$$X_0 = (C_0, A_0, N_0) \in \partial R^+,$$

то система (2) определяется линейными уравнениями

$$\frac{dC}{dt} = -\mu\left(C - C_*\right),$$
$$\frac{dA}{dt} = \rho C - \lambda A, \tag{5}$$
$$N\left(t, X_0\right) \equiv 0,$$

для которых особая точка X_{st} глобально, равномерно, асимптотически устойчива в ∂R^+.

Предположим, что множество $\Lambda^+ \cap \partial R^+$ не является пустым. Тогда существует траектория $X(t, X_0)$ системы (2), (3) такая, что при $X(t, X_0) \in R^+$ следует, что $X(t, X_0) \to \partial R^+$. На основании теоремы о непрерывной зависимости решений системы (2), (3) от начальных данных [8], $X(t, X_0) \to X_{st}$ при $t \to +\infty$. Но этого не может быть, так как X_{st} неустойчивый стационар системы (2), (3).

Таким образом, лемма доказана.

Теорема 1. *Все траектории системы (2), начинающиеся на множестве R^+, не ограничены.*

Д о к а з а т е л ь с т в о. Предположим обратное. Пусть существует такая траектория $X(t, X_0)$, которая при

$$X_0 = \left(N(0), C(0), A(0), i(0)\right) \in R^+$$

ограничена.

Введем в рассмотрение следующую функцию Ляпунова:

$$V\left(X, t\right) = \gamma AN - \beta N - \gamma\int_0^t \dot{A}N\,d\tau,$$

и найдем ее производную в силу системы (1):

$$\dot{V}\left(X, t\right) = \gamma\dot{N}A + \gamma\dot{A}N -$$
$$-\beta\dot{N} - \gamma\dot{A}N = \dot{N}\left(\gamma A - \beta\right) =$$
$$= -\left(\beta - \gamma A\right)^2 N \le 0.$$

Данная производная является локально липшицевой по X и непрерывной. Сама функция $V(X, t)$ ограничена снизу. Покажем это.

Ограниченность снизу разности $\gamma AN - \beta N$ очевидна в силу ограниченности траектории $X(t, X_0)$. Третье слагаемое представленной функции также ограничено снизу. Действительно, оно является положительным на множестве, где $\dot{A} < 0$. На множестве, где $\dot{A} > 0$, его можно оценить следующим образом:

$$-\gamma\int_0^t \dot{A}N\,d\tau \ge -\gamma\int_0^t \dot{A}N_{\max}\,d\tau =$$
$$= -\gamma N_{\max}\left[A(t) - A(0)\right] \ge$$
$$\ge -\gamma N_{\max}A_{\max} + \gamma N_{\max}A(0).$$

Вторая производная $\ddot{V}\left(X, t\right)$, в силу системы (1), очевидно, также ограничена снизу. Следовательно (см. [7], утверждение VIII.4.7),

$$\dot{V}\left(X, t\right) \to 0 \quad \text{при } t \to +\infty.$$

Этот факт гарантирует, что траектория стремится к своему ω-предельному множеству

$$\Lambda^+ \subset M =$$
$$= \left\{\left(N, C, A, i\right) \in R_+^4 : A = \frac{\beta}{\gamma} \vee N = 0\right\}.$$

Поскольку система (1) является автономной, данное множество инвариантно в силу этой системы.

Рассмотрим множество Λ^+.

На множестве R^+ плоскость $A = \beta/\gamma$ не содержит множеств, инвариантных в силу системы (2). Поэтому траектория системы (1) не может стремиться к этой плоскости при $t \to +\infty$. На плоскости $N = 0$, согласно лемме, также не может быть точек из ω-предельного множества. Следовательно, траектория системы не может при $t \to +\infty$ стремиться и к плоскости $N = 0$. Пришли к противоречию.

Теорема доказана.

Выделим на множестве R^+ два подмножества (рис. 2):

$$H_1 = \left\{\left(C, A, N\right) \in R^+ : A \le \frac{\beta}{\gamma}\right\},$$
$$H_2 = \left\{\left(C, A, N\right) \in R^+ : A > \frac{\beta}{\gamma}\right\}. \tag{6}$$

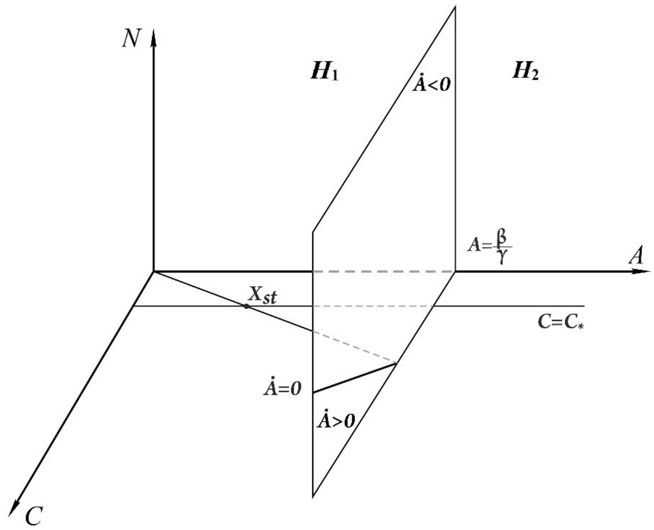


Рис. 2. Два выделенных подмножества (6) на множестве R^+

Рассмотрим в подмножестве H_1 такие поверхности, на которых величины $\dot{C}(t), \dot{A}(t), \dot{N}(t)$ соответственно равны нулю:

$$N = \frac{\mu(C - C_*)}{\alpha A}, \tag{7}$$

$$N = \frac{\rho C}{\eta\gamma A} - \frac{\lambda}{\eta\gamma}, \tag{8}$$

$$A = \frac{\beta}{\gamma}. \tag{9}$$

Оценим взаимное расположение поверхностей (7) и (8), предварительно определив их пересечение с плоскостью $N = 0$ (см. рис. 2): $C = C_*$ и $C = \lambda A/\rho$ для выражений (7) и (8) соответственно.

На пересечении этих прямых находится стационарное решение

$$X_{st} = (C_{st}, A_{st}, N_{st}) = (C_*, \rho C_*/\lambda, 0).$$

На любом сечении плоскостью $A = \tilde{A}$ поверхности (7) и (8) соответственно имеют вид:

$$N = \frac{\mu C}{\alpha\tilde{A}} - \frac{\mu C_*}{\alpha\tilde{A}}, \tag{10}$$

$$N = \frac{\rho C}{\eta\gamma\tilde{A}} - \frac{\lambda}{\eta\gamma}. \tag{11}$$

Для параметров из области Λ_1 коэффициент при C в выражении для прямой (10) оказывается больше соответствующего коэффициента для прямой (11), так как из неравенства $\mu\eta\gamma > \alpha\rho$ после деления на $\alpha\eta\gamma\tilde{A}$ следует, что

$$\frac{\mu}{\alpha\tilde{A}} > \frac{\rho}{\eta\gamma\tilde{A}}.$$

Здесь отметим, что графическое представление рассматриваемого вопроса (рис. 3) позволяет наглядно оценить взаимное расположение поверхностей (7), (8) в подмножестве H_1. Такое представление будет использовано при доказательстве следующей теоремы.

Теорема 2. *Пусть на множестве R^+ в области параметров Λ_1*

$$X(t, X_0) = \big(C(t, X_0), A(t, X_0), N(t, X_0)\big)$$

– решение системы (2), (3). Тогда при $t \to +\infty$ компонента этого решения $A(t) \to 0$, а $N(t) \to \to +\infty$.

Доказательство. Проведем доказательство в три этапа.

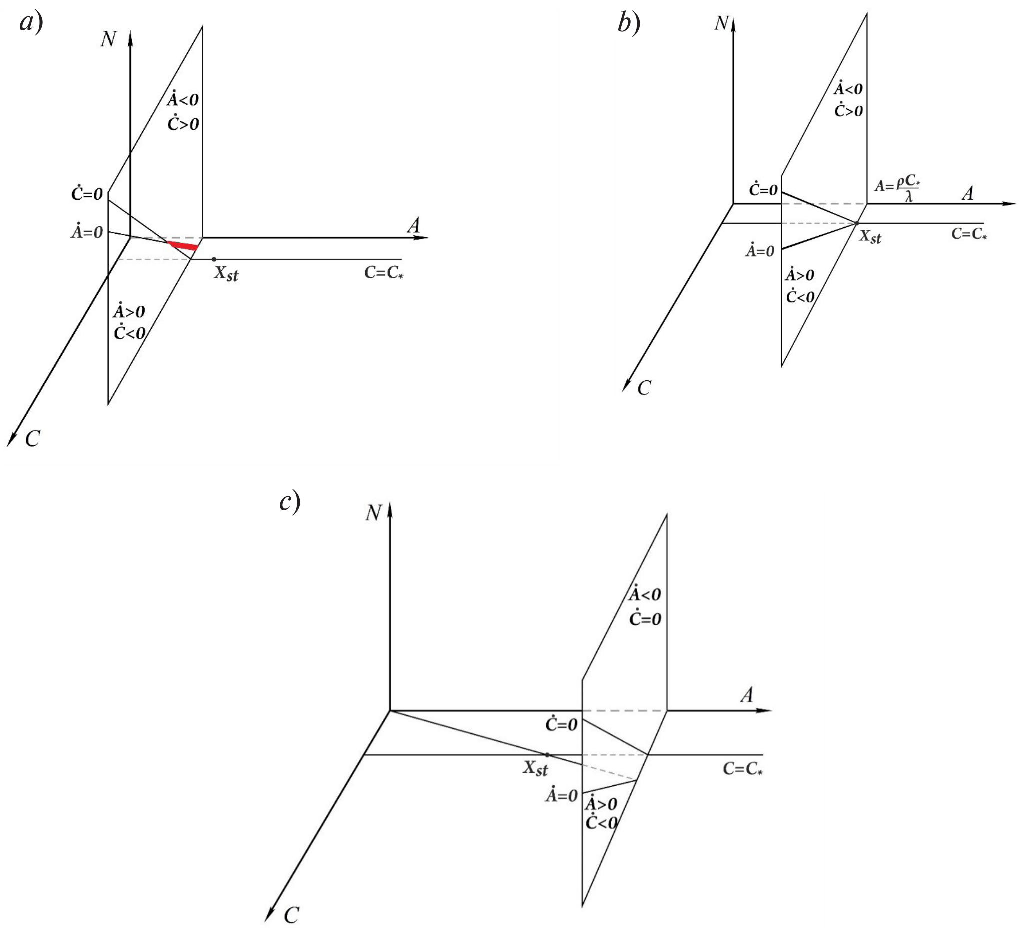


Рис. 3. Поверхность (7), (8) для разных значений величины A:
$0 < A < A_{st}$ (a), $A = A_{st}$ (b), $A_{st} < A < \beta/\gamma$ (c)

Первый этап. Покажем, что любое решение $X(t) = (C(t), A(t), N(t))$ из подмножества H_2 множества R^+ за конечный промежуток времени попадает в подмножество H_1. Действительно, при $A > \beta/\gamma$, из третьего уравнения системы (2) следует, что $\dot{N}(t) < 0$. Тогда, оставаясь в H_2, решение $X(t)$ за конечное время попадает в достаточно малую окрестность плоскости $N = 0$. Но на этой плоскости все решения системы (2) стремятся при $t \to +\infty$ к стационарному решению X_{st}, для которого

$$A_{st} = \rho C_*/\lambda < \beta/\gamma$$

в Λ_1. Поэтому теорема непрерывной зависимости от начальных данных [8] гарантирует попадание любого решения системы (2) из подмножества H_2 в подмножество H_1 за конечный промежуток времени.

Второй этап. Очевидно, что решения $X(t)$ попадают из H_2 в H_1, где $\dot{N}(t) > 0$, через часть плоскости (9) $A = \beta/\gamma$, на которой $\dot{A} < 0$ (см. рис. 2). Теперь покажем, что из той части множества H_1, где $\dot{A} < 0$, при $t \to +\infty$ компонента $A(t) \to 0$, а $N(t) \to +\infty$.

Введем в рассмотрение две функции: $V_1(X) = \dot{A}$ и $V_2(X) = \dot{C}$. Легко проверить, используя соотношения (7), (8), что в подмножестве H_1 на поверхности $V_1(X) = 0$ при

$$A_{st} < A \leq \beta/\gamma$$

выполняется неравенство $V_2(X) < 0$ (см. рис. 3,b,c). Поэтому, в силу системы (2),

$$\dot{V}_1(X)\Big|_{X:V_1(X)=0} =$$

$$= \dot{A} = \rho\dot{C} - \eta\gamma\dot{N}A < 0.$$

Следовательно, решение системы с поверхности $\dot{A} = 0$ попадает в область, где $\dot{A} < 0$. Лишь при некоторых значениях 0 < < A < A_{st}, выделенных на рис. 3,*a* (прямой отрезок красного цвета), решение может с поверхности $\dot{A} = 0$ попасть в область, где $\dot{A} > 0$. Начав возрастать, компонента $A(t)$ сможет увеличиваться до значения $A = A_{st}$ лишь при условии, что $\dot{C} < 0$ при $A = A_{st}$ (рис. 3,*b*). Для этого нужно пересечь поверхность $V_2(X) = \dot{C} = 0$. Но на этой поверхности, в силу системы (2),

$$\dot{V}_2(X) = \ddot{C} = \alpha\dot{A}N + \alpha A\dot{N} > 0.$$

Поэтому, поскольку $\dot{N} > 0$ в подмножестве H_1, то $A(t)$ через поверхность (8) вновь попадет в область, где $\dot{A} < 0$, а, следовательно, начинает убывать. Таким образом, при $t \to +\infty$ компонента $A(t) \to 0$, а $N(t) \to +\infty$.

Третий этап. Решение $X(t, X_0)$, начинаясь в части H_1, где $\dot{A} > 0$ и $\dot{C} < 0$, попадает либо через плоскость $A = \beta/\gamma$ в подмножество H_2, либо на поверхность $\dot{A} = 0$, где $V_1(X) = 0$. Но в первом случае, как показано на предыдущих этапах, $A(t) \to 0$, а $N(t) \to +\infty$ при $t \to \to +\infty$. Во втором случае, в силу системы (2), имеем:

$$\dot{V}_1(X)\Big|_{X:V_1(X)=0} =$$
$$= \ddot{A} = \rho\dot{C} - \eta\gamma\dot{N}A < 0.$$

Поэтому попадаем в ту часть области H_1, в которой $\dot{A} < 0$, где в силу того, что $\dot{N} > 0$, вновь $A(t) \to 0$, а $N(t) \to +\infty$ при $t \to +\infty$, что и требовалось доказать.

Теорема 2 доказана.

Интерпретация. При данном соотношении параметров системы (2) результаты математического исследования позволяют сделать вывод о потенциальной готовности общества принимать новые идеи и взгляды. Любое появление в СМИ взглядов и мнений, не совпадающих с традиционными, найдет поддержку членов общества. В этом случае осуществляется полная смена адресатами ранее доминирующей концепции.

Анализ модели (2), (3) в области параметров Λ_2

Легко показать (см. работу [1], утверждение 2), что в области параметров Λ_2 стационар

$$X_{st} = \left(C_{st}, A_{st}, N_{st}\right) =$$
$$= \left(C_*, \rho C_*/\lambda, 0\right)$$

системы (2), (3) асимптотически устойчив. Исследуем область его притяжения.

Заметим, что правая часть уравнения для $C(t)$ системы (2) гарантирует попадание траектории с начальными условиями из множества R_+^3 в подмножество, где $C(t) \ge C_*$, которое является инвариантным. Поэтому проведем исследование лишь в этой части R_+^3. При этом из уравнения для $A(t)$ системы (2) видно, что плоскость $A = \beta/\lambda$ разбивает это подпространство на два множества (рис. 4):

$$R_+^N = \left\{\left(C, A, N\right) \in R_+^3 : C \ge C_*,\ \dot{N} \ge 0\right\},$$

$$R_-^N = \left\{\left(C, A, N\right) \in R_+^3 : C \ge C_*,\ \dot{N} \le 0\right\},$$

в котором находится X_{st}.

Теорема 3. *Пусть для системы (2), (3) в пространстве параметров Λ_2 выполняется условие*

$$\beta\eta\gamma + \mu\eta\gamma < \rho\alpha. \qquad (12)$$

Тогда все пространство

$$R_+^3 =$$
$$= \left\{\left(C, A, N\right) \in R^3 : C \ge 0,\ A \ge 0, N \ge 0\right\}$$

является частью области притяжения асимптотически устойчивого стационарного решения X_{st}.

Д о к а з а т е л ь с т в о. Возьмем произвольную траекторию $X(t, X_0)$ системы (2), (3), которая начинается на множестве R_+^3. Как было отмечено в начале раздела, за конечный промежуток времени она окажется либо в R_+^N, либо в R_-^N. Дальнейшие рассуждения

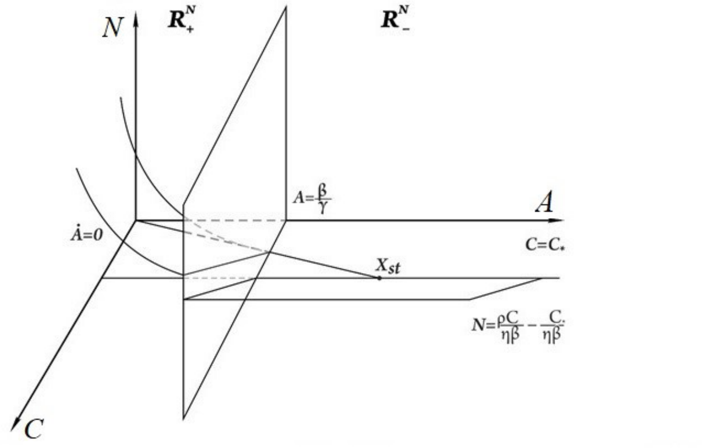


Рис. 4. Ключевые поверхности (8) и (13) на множествах R_+^N и R_-^N соответственно

также проведем в три этапа.

Первый этап. Покажем, что любое решение

$$X(t) = \big(C(t), A(t), N(t)\big)$$

из множества R_+^N за конечный промежуток времени попадает в множество R_-^N.

Рассмотрим поверхность (8) (рис. 4), где $\dot{A} = 0$, и функцию $V_1(X) = \dot{A}$. В области параметров Λ_2, с учетом выражения (8), при выполнении условия (12), для некоторого положительного δ имеем:

$$\dot{V}_1(X)\Big|_{X:V_1(X)=0} =$$

$$= \ddot{A} = \rho\dot{C} - \eta\gamma\dot{N}A =$$

$$= \left(\frac{\rho C - \lambda A}{\eta\gamma}\right)\big(\rho\alpha - \mu\eta\gamma - \beta\eta\gamma +$$

$$+ \eta\gamma^2 A\big) + \rho\mu C_* - \lambda\mu A \geq$$

$$\geq \left(\frac{\rho C_* - \lambda\dfrac{\beta}{\gamma}}{\eta\gamma}\right)\big(\rho\alpha - \mu\eta\gamma -$$

$$- \beta\eta\gamma + \eta\gamma^2 A\big) + \rho\mu C_* - \lambda\mu\frac{\beta}{\gamma} =$$

$$= \left(\frac{\rho\gamma C_* - \lambda\beta}{\eta\gamma^2}\right)\big(\rho\alpha - \mu\eta\gamma -$$

$$- \beta\eta\gamma + \eta\gamma^2 A\big) + \frac{\rho\mu\gamma C_* - \lambda\mu\beta}{\gamma} > \delta > 0.$$

Таким образом, траектория $X(t)$ с поверхности (8) попадает в область, где $\dot{A} > 0$ и, соответственно,

$$N < \frac{\rho C}{\eta\gamma A} - \frac{\lambda}{\eta\gamma}.$$

Если $V_1(X) < 0$ в некоторой части пространства R_+^N, то исследование знака производной $V_1(X)$, в силу системы (2), сводится к вычислению знака производной на поверхности $V_1(X) = 0$, так как

$$\dot{V}_1(X)_{X:V_1(X)<0} =$$

$$= \ddot{A} = \rho\dot{C} - \lambda\dot{A} - \eta\gamma\dot{N}A - \eta\gamma\dot{A}N \geq$$

$$\geq \rho\dot{C} - \eta\gamma\dot{N}A = \dot{V}_1(X)\Big|_{X:V_1(X)=0} > 0.$$

Это значит, что все траектории из множества R_+^N попадают в ту ее часть, где $\dot{A} > 0$.

В силу гладкости функции $V_1(X)$, найдется положительное число ε такое, что, компонента $N(t)$ с некоторого конечного момента времени будет удовлетворять соотношению

$$N < \frac{\rho C}{\eta\gamma A} - \frac{\lambda}{\eta\gamma} - \varepsilon,$$

если только траектория $X(t)$ находится на множестве R_+^N.

Далее, для компоненты $A(t) > 0$ имеем:

$$\dot{A} = \rho C - \eta\gamma AN - \lambda A > \rho C -$$
$$- \eta\gamma A\left(\frac{\rho C}{\eta\gamma A} - \frac{\lambda}{\eta\gamma} - \varepsilon\right) - \lambda A =$$
$$= \eta\gamma A\varepsilon > 0.$$

Последнее неравенство гарантирует, что любая траектория $X(t)$ системы (2) через конечное время попадет в R_-^N, где $A > \beta/\gamma$ и, следовательно, $\dot{N} < 0$.

Второй этап. Докажем, что попав из множества R_+^N в множество R_-^N, траектория $X(t)$ стремится при $t \to +\infty$ к стационарному решению X_{st}.

Установим направление векторного поля на поверхности

$$N = \frac{\rho}{\eta\beta}\left(C - C_*\right) + q,\ q - \text{const.} \qquad (13)$$

Скалярное произведение векторов

$$\mathbf{n} = \left(\frac{\partial N}{\partial C}; \frac{\partial N}{\partial A}; -1\right) =$$
$$= \left(\frac{\rho}{\eta\beta}; 0; -1\right),$$

$$\frac{dX}{dt} = \left(\frac{dC}{dt}; \frac{dA}{dt}; \frac{dN}{dt}\right)$$

имеет следующий вид:

$$\frac{\rho}{\eta\beta}\left(C - C_*\right) \times$$
$$\times \left[\left(\alpha\frac{\rho}{\eta\beta} + \gamma\right)A - \left(\mu + \beta\right)\right].$$

Это выражение положительно при

$$A > \frac{\mu + \beta}{\alpha\dfrac{\rho}{\eta\beta} + \gamma} = \frac{\left(\mu + \beta\right)\eta\beta}{\alpha\rho + \gamma\eta\beta} = \overline{A}.$$

В силу того, что в области параметров Λ_2 $\bar{A} < \beta/\gamma$, траектория $X(t)$, попав из множества R_+^N в R_-^N(см. рис. 4), уже не сможет вернуться обратно из R_-^N в R_+^N. И так как в R_-^N $\dot{N} < 0$, за конечное время траектория $X(t)$ системы (2) попадет в сколь угодно малую окрестность плоскости $N = 0$. Для системы (2) эта плоскость является инвариантной, и, согласно системе уравнений (5), все траектории на ней стремятся к стационару X_{st}. Следовательно, на основании теоремы о непрерывной зависимости решений системы (2), (3) от начальных данных [8], траектория $X(t)$ этой системы из малой окрестности плоскости $N = 0$ также стремится к стационару X_{st} при $t \to +\infty$.

Третий этап. Возьмем траекторию $X(t, X_0)$ системы (2), (3), которая начинается на множестве R_-^N. В любой момент времени t точка этой траектории находится на поверхности (13) для некоторого $q = q_0$. Но в R_-^N, как показано на втором этапе доказательства, с увеличением времени t, $X(t, X_0)$ «спускается» на поверхность, где $q < q_0$. Следовательно, решение $X(t, X_0)$, начинаясь на множестве R_-^N, либо попадает через плоскость $A = \beta/\gamma$ на множество R_+^N, либо на поверхность (13), где $q \le 0$. В обоих случаях это гарантирует, согласно рассуждениям предыдущих этапов доказательства, что $X(t, X_0) \to X_{st}$ при $t \to +\infty$.

Таким образом, теорема 3 полностью доказана.

Фазовый портрет системы (2), (3) изображен на рис. 5.

Представляет интерес интерпретация полученных результатов. Они показывают, что при обозначенных соотношениях параметров системы (2) в обществе (или его сегменте) полностью доминирует определенная концепция (например, идеологическая или технологическая). Причиной этому могут быть либо полное одобрение происходящих в обществе процессов, либо неготовность к смене устоявшихся взглядов. Также это может происходить из-за высокой эффективности органов цензуры, которые не дают возможности новой информации заполнить информационное пространство.

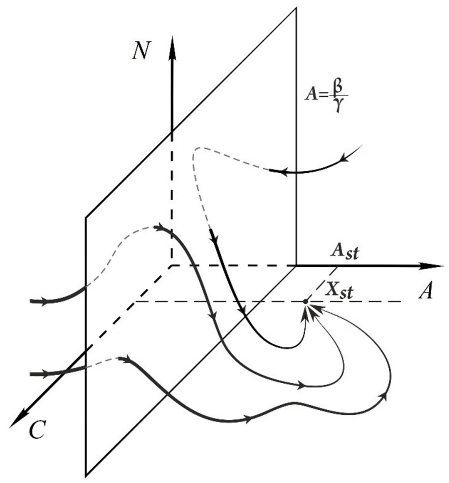


Рис. 5. Фазовый портрет системы (2), (3) в области параметров Λ_2

Заключение

Проведенное в данной работе исследование существенно расширяет область изученных характеристик системы, которые позволяют прогнозировать поведение решений в зависимости от начальных данных.

1. В пространстве параметров выделены две важные области Λ_1 и Λ_2, в которых проведено математическое обоснование определенных глобальных свойств фазового портрета исследуемой динамической системы.

2. Для каждого случая дана интерпретация результатов исследования. В одном случае – это готовность общества к полной смене доминирующей концепции (например, идеологической или технологической). В другом – напротив, неготовность по разным причинам принять новые положения.

Результаты, полученные в данной работе, авторы считают продолжением системного исследования, изложенного в работах [1, 9 – 11]. Данный проект направлен на изучение СМИ как динамической системы, в которой изменения происходят с высокой скоростью. А обращение к методам нелинейной динамики позволяет наиболее полно изучать структуру и свойства процессов в такой системе.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Тимофеев С.В., Суходолов А.П.** Модель распространения новой информации в обществе // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2019. Т. 12. № 4. С. 119–134.

2. **Понтрягин Л.С.** Обыкновенные дифференциальные уравнения. М.: Наука, 1974. 332 с.

3. **Еругин Н.П.** Книга для чтения по общему курсу дифференциальных уравнений. Минск: Наука и техника, 1972. 664 с.

4. **Чезаре Л.** Асимптотическое поведение и устойчивость решений обыкновенных дифференциальных уравнений. М.: Мир, 1964. 478 с.

5. **Lakshmikantham V., Ladas G.E.** Differential equations in abstract spaces. New-York: Academic Press, 1972. 231 p.

6. **Баутин Н.Н., Леонтович Е.А.** Методы и приемы качественного исследования динамических систем на плоскости. М.: Наука, 1990. 486 с.

7. **Руш Н., Абетс П., Лалуа М.** Прямой метод Ляпунова в теории устойчивости. М.: Мир, 1980. 300 с.

8. **Федорюк М.В.** Обыкновенные дифференциальные уравнения. М.: Наука, 1985. 448 с.

9. **Баенхаева А.В., Тимофеев С.В.** Эволюционный подход к развитию средств массовой информации: построение математической модели // Известия Байкальского государственного университета. 2016. Т. 26. № 5. С. 825–833.

10. **Суходолов А.П., Кузнецова И.А., Тимофеев С.В.** Анализ подходов в моделировании средств массовой информации // Вопросы теории и практики журналистики. 2017. Т. 6. № 3. С. 287–305.

11. **Суходолов А.П., Тимофеев С.В.** СМИ и виртуальная реальность: новые возможности и перспективы // Вопросы теории и практики журналистики. 2018. Т. 7. № 4. С. 567–580.

Статья поступила в редакцию 09.12.2020, принята к публикации 24.12.2020.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

ТИМОФЕЕВ Сергей Викторович – *кандидат физико-математических наук, доцент кафедры математических методов и цифровых технологий Байкальского государственного университета, г. Иркутск, Российская Федерация.*

664003, Российская Федерация, г. Иркутск, ул. Ленина, 11

timofeevsv12@gmail.com

БАЕНХАЕВА Аюна Валерьевна – *кандидат технических наук, старший преподаватель кафедры математических методов и цифровых технологий Байкальского государственного университета, г. Иркутск, Российская Федерация.*

664003, Российская Федерация, г. Иркутск, ул. Ленина, 11

ayunab2000@mail.ru

REFERENCES

1. **Timofeev S.V., Sukhodolov A.P.,** A model of new information dissemination in the society, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 12 (4) (2019) 119–134.

2. **Pontryagin L.S.,** Obyknovennyye differentsialnyye uravneniya [Ordinary differential equations], Nauka, Moscow,1974.

3. **Erugin N.P.,** Kniga dlya chteniya po obshchemu kursu differentsialnykh uravneniy [The book for reading on the general course of differential equations], Nauka i Tekhnika, Minsk, 1972.

4. **Cesari L.,** Asymptotic behavior and stability problems in ordinary differential equations, Inbunden Engelska, 1971.

5. **Ladas G.E., Lakshmikantham V.,** Differential equations in abstract spaces, Academic Press, New York, 1972.

6. **Bautin N.N., Leontovich E.A.,** Metody i priyemy kachestvennogo issledovaniya dinamicheskikh sistem na ploskosti [Metods and technique of qualitative study of dynamical systems on the plane], Nauka, Moscow, 1990.

7. **Rouche N., Habets P., Laloy N.,** Stability theory by Liapunov's direct method, Springer-Verlag, 1977.

8. **Fedoryuk M.V.,** Obyknovennyye differentsialnyye uravneniya [Ordinary differential equations], Nauka, Moscow, 1985.

9. **Bayenkhayeva A.V., Timofeev S.V.,** The evolutionary approach to development of mass media: construction of a mathematical model, Izvestiya Baykalskogo Gosudarstvennogo Universiteta [News of Baikal State University]. 26 (5) (2016) 825–833.

10. **Sukhodolov A.P., Kuznetsova I.A., Timofeev S.V.,** The analysis of approaches in modelling of mass media, Theoretical and Practical Issues of Journalism. 6 (3) (2017) 287–305.

11. **Sukhodolov A.P., Timofeev S.V.,** Mass media and virtual reality: new opportunities and prospects, Theoretical and Practical Issues of Journalism. 7 (4) (2018) 567–580.

Received 09.12.2020, accepted 24.12.2020.

THE AUTHORS

TIMOFEEV Sergey V.

Baikal State University

11, Lenin St., Irkutsk, 664003, Russian Federation

timofeevsv12@gmail.com

BAENKHAEVA Ayuna V.
Baikal State University
11, Lenin St., Irkutsk, 664003, Russian Federation
ayunab2000@mail.ru

DOI: 10.18721/JPM.14114
УДК 539.3

СООТНОШЕНИЯ МЕЖДУ МОДУЛЕМ ЮНГА И КОЭФФИЦИЕНТОМ ДИФФУЗИИ ДВУХФАЗНОГО МАТЕРИАЛА

К.П. Фролова

Институт проблем машиноведения РАН,
Санкт-Петербург, Российская Федерация;

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Санкт-Петербург, Российская Федерация

В работе устанавливается взаимосвязь между изменениями эффективных упругих и диффузионных свойств двухфазного композита через микроструктурные параметры. Предполагается, что в материале присутствуют одинаковые по форме неоднородности. Представлен вывод соотношений в явном тензорном виде. При установлении взаимосвязи между эффективными свойствами учитывается эффект сегрегации, заключающийся в скачке концентрации растворенного вещества на границе раздела матрица/неоднородность. Полученные соотношения целесообразно использовать для определения одних эффективных свойств через другие, когда микроструктура материала неизвестна. Установленная взаимосвязь проверена для изотропного материала с порами. Найденные приближенные соотношения сравниваются с точными, полученными для конкретной микроструктуры.

Ключевые слова: эффективный модуль Юнга, эффективный коэффициент диффузии, взаимосвязь между свойствами композита

Ссылка при цитировании: Фролова К.П. Соотношения между модулем Юнга и коэффициентом диффузии двухфазного материала // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14. № 1. С. 177–189. DOI: 10.18721/JPM.14114

CROSS-PROPERTY CONNECTIONS BETWEEN YOUNG'S MODULUS AND DIFFUSION COEFFICIENT OF TWO-PHASE COMPOSITE

K.P. Frolova

Institute for Problems in Mechanical Engineering RAS,
St. Petersburg, Russian Federation;

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,
St. Petersburg, Russian Federation

The paper interrelates changes in the effective elastic and diffusion properties of a two-phase composite using microstructural parameters. It is suggested that there are some inhomogeneities identical in shape in the material. The development of the cross-property connections in the explicit tensor form has been presented. The segregation effect, being a constant jump in concentration of particles of the solute flux at the matrix/inhomogeneity interface, was taken into account. It is a good practice to apply the derived cross-property relations to finding some effective properties of material using others when the material's microstructure is unknown. The obtained expressions were put to the test for isotropic material with pores; the approximate correlations were compared with exact ones found for the specific microstructure.

Keywords: effective Young's modulus, effective diffusion coefficient, cross-property connection, segregation effect

Citation: Frolova K.P., Cross-property connections between Young's modulus and diffusion coefficient of two-phase composite, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (1) (2021) 177–189. DOI: 10.18721/JPM.14114

Введение

Нахождение соотношений между различными эффективными свойствами гетерогенных материалов является фундаментальной проблемой механики [1, 2]. Данные математические выражения устанавливают зависимости между изменениями физических свойств, различных по природе, но связанных с одними и теми же особенностями микроструктуры материала. Значимость данной проблемы обусловлена тем, что дает возможность определять одни эффективные свойства через другие при отсутствии полной информации о микроструктуре композита.

Поиск взаимосвязей между изменениями различных свойств обсуждается в литературе, начиная с 1960-х годов. Детальный обзор данной проблемы представлен в монографии [3]; согласно представленной информации, опубликованные исследования можно условно разделить на четыре направления:

качественные изыскания,

установление эмпирических зависимостей,

определение диапазонов изменения характеристик материалов,

нахождение соотношений для материалов с изолированными неоднородностями в явном виде.

В настоящее время имеется лишь ограниченное количество работ, опубликованных по четвертому направлению.

Взаимосвязь эффективных упругих и проводящих свойств материалов в явном виде была установлена в работах [4, 5]. Полученные авторами выражения можно использовать для описания в общем случае анизотропных материалов с изотропной матрицей; при этом показано, что точность предлагаемых соотношений зависит от формы неоднородностей и разницы в упругих свойствах компонентов среды. В статье [6] получены связующие уравнения между прочностными характеристиками материала и теплопроводностью металлического композита с чешуйками графита. В статьях [7, 8] получены соотношения между эффективным тепловым расширением и эффективной теплопроводностью, точность которых зависит от формы неоднородностей и разницы в теплопроводности фаз композита. В статьях [9, 10] получены взаимные зависимости между эффективным коэффициентом диффузии и теплопроводностью металл-алмазного композита. В статье [11] в явном виде получены соотношения между тепловыми и электропроводящими свойствами композита.

Процесс диффузии существенно отличается от процесса теплопроводности, рассмотренного в статьях [4, 5], тем, что концентрация, как правило, испытывает скачок на границе раздела двух фаз (матрица – неоднородность), тогда как температура является непрерывной функцией [12]. Явление накопления частиц диффундирующего вещества на границе раздела фаз или внутри включений известно как эффект сегрегации [13].

Данная работа посвящена установлению взаимосвязи между эффективными упругими и диффузионными свойствами двухфазного композита с неоднородностями одинаковой формы; при этом учитывается эффект сегрегации.

Полученные соотношения проверяются для случая изотропного материала с порами; при этом определяется связь между изменениями модуля Юнга и коэффициента диффузии.

Соотношения между эффективными упругими и диффузионными свойствами двухфазного материала

Соотношения между эффективными упругими и проводящими свойствами, полученные в статьях [4, 5], основаны на том, что изменение этих различных по природе свойств контролируется одними и теми же микроструктурными параметрами. При выводе соотношений использовалось два основных предположения:

неоднородности имеют форму сфероидов;

эффективные свойства определяются без учета взаимодействия неоднородностей.

При этом в статьях [4, 5] показано, что полученные соотношения выполняются (в том числе) для материалов с неоднородностями, форма которых отлична от сфероидальной, и при бóльших концентрациях, чем допускает метод гомогенизации без учета взаимодействия неоднородностей. Это объясняется тем, что форма и концентрация неоднородностей влияют на упругие и проводящие свойства в одинаковой степени.

Основываясь на аналогии между уравнениями диффузии и теплопроводности, воспользуемся для определения связи между эффективными упругими и диффузионными свойствами методикой, изложенной в работах [4, 5]. Согласно данной методике, в рассмотрение вводятся тензоры вклада в искомые свойства, которые выступают как основные микроструктурные параметры [3].

При определении эффективных упругих свойств вводится тензор вклада неоднородности в податливость – тензор 4-го ранга $\mathbf{H}$, описывающий дополнительную деформацию, возникающую в представительном объеме ввиду присутствия изолированной неоднородности. Указанный тензор зависит от формы неоднородности и разности упругих свойств матрицы и неоднородности. В случае сфероидального включения тензор 4-го ранга $\mathbf{H}$ является трансверсально-изотропным (ось симметрии совпадает с осью симметрии сфероида) и может быть представлен как линейная комбинация элементов тензорного базиса $\mathbf{T}_1$, $\mathbf{T}_2$, ..., $\mathbf{T}_6$:

$$\mathbf{H} = \sum_{k=1}^{6} h_k \mathbf{T}_k, \tag{1}$$

где

$$\mathbf{T}_1 = \boldsymbol{\theta\theta},$$
$$\mathbf{T}_2 = \frac{1}{2}\Big((\boldsymbol{\theta\theta})^T_{(1,4)} + (\boldsymbol{\theta\theta})^T_{(2,4)} - \boldsymbol{\theta\theta}\Big),$$
$$\mathbf{T}_3 = \boldsymbol{\theta}\mathbf{nn},\ \mathbf{T}_4 = \mathbf{nn}\boldsymbol{\theta},$$
$$\mathbf{T}_5 = \frac{1}{4}\Big(\mathbf{n}\boldsymbol{\theta}\mathbf{n} + (\mathbf{n}\boldsymbol{\theta}\mathbf{n})^T_{(1,2)(3,4)} + (\boldsymbol{\theta}\mathbf{nn})^T_{(1,4)} + (\boldsymbol{\theta}\mathbf{nn})^T_{(2,3)}\Big),$$
$$\mathbf{T}_6 = \mathbf{nnnn},$$

($\boldsymbol{\theta}$ – проектор на плоскость, ортогональную орту оси симметрии сфероидальной неоднородности $\mathbf{n}$; $\boldsymbol{\theta} = \mathbf{I} - \mathbf{nn}$ ($\mathbf{I}$ – единичный тензор 2-го ранга)).

Эффективный тензор податливости можно определить в рамках метода гомогенизации без учета взаимодействия неоднородностей следующим образом:

$$\mathbf{S}^{eff} = \mathbf{S}^0 + \frac{1}{V}\sum_k V_k \mathbf{H}_k, \tag{2}$$

где $\mathbf{S}^0$ – тензор податливости матрицы, V – представительный объем, V_k – объем k-ой неоднородности.

При определении эффективных упругих свойств материала с одинаковыми по форме неоднородностями, выражение (2) можно переписать в виде

$$\mathbf{S}^{eff} = \mathbf{S}^0 + \rho\big(W_1\mathbf{II} + W_2\mathbf{J}\big) + W_3\big(\mathbf{I}\boldsymbol{\omega} + \boldsymbol{\omega}\mathbf{I}\big) + W_4\big(\mathbf{J}\cdot\boldsymbol{\omega} + \boldsymbol{\omega}\cdot\mathbf{J}\big) + W_5\,\boldsymbol{\Omega}, \tag{3}$$

где

$$\mathbf{J} = \frac{1}{2}\Big((\mathbf{II})^T_{(1,4)} + (\mathbf{II})^T_{(2,4)}\Big)$$

– единичный тензор 4-го ранга; параметры W_i(i = 1, 2, ..., 5) выражаются через входящие в выражение (1) коэффициенты h_i как

$$W_1 = h_1 - h_2/2,\ W_2 = h_2,$$
$$W_3 = -2h_1 + h_2 + 2h_3,$$

$$W_4 = -2h_2 + h_5,$$
$$W_5 = h_1 + \frac{h_2}{2} - 2h_3 - h_5 + h_6,$$

а

$$\mathbf{\Omega} = \frac{1}{V}\sum_k V_k \left(\mathbf{nnnn}\right)^{(k)},$$
$$\boldsymbol{\omega} = \frac{1}{V}\sum_k V_k \left(\mathbf{nn}\right)^{(k)}, \qquad (4)$$
$$\rho = \mathrm{tr}\boldsymbol{\omega} = \frac{1}{V}\sum_k V_k,$$

ρ – объемная доля неоднородностей.

Аналогичным образом определяются эффективные диффузионные свойства материала, состоящего из матрицы с шаровым тензором диффузии $\mathbf{D}_0 = D_0\mathbf{I}$ и неоднородностей с $\mathbf{D}_1 = D_1\mathbf{I}$ [14]. В рассмотрение вводится либо тензор вклада неоднородности в диффузию – $\mathbf{H}^D$ (тензор 2-го ранга), определяющий дополнительный массовый поток, вызванный присутствием в материале неоднородности, либо тензор вклада в сопротивляемость $\mathbf{H}^{DR}$ (тензор 2-го ранга), $\mathbf{H}^{DR} = -\mathbf{H}^D / D_0^2$.

Предполагается, что и матрица, и неоднородность подчиняются линейному закону Фика. При этом считается, что нормальная компонента потока диффундирующего вещества непрерывна при переходе через границу матрицы (со знаком плюс) и неоднородности (со знаком минус), а концентрация испытывает скачок

$$c(x)\big|_{x\to\partial V+} = sc(x)\big|_{x\to\partial V-}, \qquad (5)$$

где s – параметр сегрегации.

Наличие эффекта сегрегации приводит к принципиальному отличию процесса диффузии от процесса теплопроводности, рассмотренного в статьях [4, 5]. Параметр сегрегации показывает соотношение концентраций на границе неоднородности и внутри нее и равен единице в случае непрерывной функции концентрации при переходе через границу раздела матрица/неоднородность. Случай $s > 1$ соответствует материалу, в котором частицы диффундирующего вещества скапливаются на границе раздела двух фаз, тогда как случай $s < 1$ соответствует оседанию частиц внутри неоднородностей [14]. При исследовании матрицы с порами, только случай $s \le 1$ представляет интерес с физической точки зрения.

В случае сфероидальной неоднородности тензоры вклада определяются следующим образом:

$$\mathbf{H}^D = D_0\left[B_1\left(\mathbf{I} - \mathbf{nn}\right) + B_2\mathbf{nn}\right],$$
$$\mathbf{H}^{DR} = -\frac{1}{D_0}\left[B_1\left(\mathbf{I} - \mathbf{nn}\right) + B_2\mathbf{nn}\right], \qquad (6)$$

при этом коэффициенты B_1 и B_2 зависят от формы неоднородности, разницы в коэффициентах диффузии матрицы и неоднородности, а также от параметра сегрегации.

Эффективный тензор диффузии вводится в рамках метода гомогенизации без учета взаимодействия неоднородностей как

$$\mathbf{D}^{eff} = D_0\mathbf{I} + \frac{1}{V}\sum_k V_k \mathbf{H}_k^D, \qquad (7)$$

а эффективный тензор сопротивляемости имеет вид

$$\left(\mathbf{D}^{eff}\right)^{-1} = \frac{1}{D_0}\mathbf{I} + \frac{1}{V}\sum_k V_k \mathbf{H}_k^{DR}. \qquad (8)$$

Эффективные диффузионные свойства материала с одинаковыми по форме неоднородностями можно выразить через объемную долю неоднородностей ρ и тензор второго ранга $\boldsymbol{\omega}$, определяемые выражениями (4), следующим образом:

$$\frac{1}{D_0}\mathbf{D}^{eff} - \mathbf{I} = \mathbf{I} - D_0\left(\mathbf{D}^{eff}\right)^{-1} =$$
$$= B_1\rho\mathbf{I} + \left(B_2 - B_1\right)\boldsymbol{\omega}. \qquad (9)$$

Установление явной взаимосвязи между эффективными упругими и диффузионными свойствами возможно, если они выражаются через одни и те же микроструктурные параметры, т. е. скалярный параметр ρ и тензорный параметр $\boldsymbol{\omega}$. Таким образом, для получения соотношений между эффективными свойствами, в выражении для эффективного тензора податливости (3) необходимо избавиться от слагаемого, содержащего тензор 4-го ранга $\boldsymbol{\Omega}$. Согласно утверждениям в статьях [4, 5], это возможно за счет корректировки коэффициентов W_1, W_2, W_3, W_4:

$$\mathbf{S}^{eff} = \mathbf{S}^0 + \frac{1}{E_0}\Big[\rho\left(s_1\mathbf{I}\cdot\mathbf{I} + s_2\mathbf{J}\right) + \\ +\frac{s_3}{2}\left(\mathbf{I}\cdot\boldsymbol{\omega} + \boldsymbol{\omega}\cdot\mathbf{I}\right) + \frac{s_4}{2}\left(\mathbf{J}\cdot\boldsymbol{\omega}+\boldsymbol{\omega}\cdot\mathbf{J}\right)\Big], \qquad (10)$$

где E_0 – модуль Юнга матрицы, коэффициенты s_i ($i = 1, 2, 3, 4$) определяются как

$$s_1 = E_0\left(\hat{h}_1 - \hat{h}_2/2\right),$$
$$s_2 = E_0\hat{h}_2,$$
$$s_3 = E_0\left(-2\hat{h}_1 + \hat{h}_2 + 2\hat{h}_3\right),$$
$$s_4 = E_0\left(-2\hat{h}_2 + \hat{h}_5\right),$$

а коэффициенты $\hat{h}_i$ ($i = 1, 2, ..., 5$) выражаются через h_i следующим образом:

$$\hat{h}_i = h_i\left(1 - \delta\ \mathrm{sign}h_i\right)$$
$$\text{при } i = 1, 2, 6;$$
$$\hat{h}_i = h_i\left(1 + \delta\ \mathrm{sign}h_i\right)$$
$$\text{при } i = 3, 5;$$
$$\delta = \\ = \frac{h_1 + h_2/2 - 2h_3 - h_5 + h_6}{|h_1| + |h_2|/2 + 2|h_3| + |h_5| + |h_6|}.$$

Для вывода соотношений между эффективными упругими и диффузионными свойствами материала для общего случая распределения неоднородностей по ориентациям, выразим тензор $\boldsymbol{\omega}$ и параметр ρ через тензоры $\mathbf{D}^{eff}$ и $\left(\mathbf{D}^{eff}\right)^{-1}$, соответственно:

$$\boldsymbol{\omega} = \\ = \frac{1}{\left(B_2 - B_1\right)}\left(\frac{1}{D_0}\mathbf{D}^{eff} - \mathbf{I}\right) - \\ - \frac{B_1}{\left(B_2 - B_1\right)}\rho\mathbf{I}, \qquad (11)$$
$$\rho = \frac{\mathrm{tr}\mathbf{D}^{eff} - 3D_0}{D_0\left(2B_1 + B_2\right)};$$

$$\boldsymbol{\omega} = \\ = \frac{1}{\left(B_2 - B_1\right)}\left(\mathbf{I} - D_0\left(\mathbf{D}^{eff}\right)^{-1}\right) - \\ - \frac{B_1}{\left(B_2 - B_1\right)}\rho\mathbf{I}, \qquad (12)$$
$$\rho = \frac{3 - D_0\mathrm{tr}\left(\mathbf{D}^{eff}\right)^{-1}}{2B_1 + B_2}.$$

В результате подстановки этих выражений в равенство (10) можно получить два соотношения, устанавливающих явную взаимосвязь между эффективной податливостью и эффективными диффузионными свойствами:

$$E_0\left(\mathbf{S}^{eff} - \mathbf{S}^0\right) = \\ = \left(\alpha_1\mathbf{I}\cdot\mathbf{I} + \alpha_2\mathbf{J}\right)\times \\ \times\left(\mathrm{tr}\mathbf{D}^{eff}/D_0 - 3\right) + \\ +\alpha_3\Big[\left(\mathbf{D}^{eff}/D_0 - \mathbf{I}\right)\mathbf{I} + \\ +\mathbf{I}\left(\mathbf{D}^{eff}/D_0 - \mathbf{I}\right)\Big] + \\ +\alpha_4\Big[\left(\mathbf{D}^{eff}/D_0 - \mathbf{I}\right)\cdot\mathbf{J} + \\ +\mathbf{J}\cdot\left(\mathbf{D}^{eff}/D_0 - \mathbf{I}\right)\Big] \qquad (13)$$

при использовании соотношений (11) и

$$E_0\left(\mathbf{S}^{eff} - \mathbf{S}^0\right) = \\ = \left(\alpha_1\mathbf{I}\cdot\mathbf{I} + \alpha_2\mathbf{J}\right)\times \\ \times\left(3 - D_0\mathrm{tr}\left(\mathbf{D}^{eff}\right)^{-1}\right) +$$

$$+\alpha_3\left[\left(\mathbf{I}-D_0\left(\mathbf{D}^{eff}\right)^{-1}\right)\mathbf{I}+\right. \tag{14}$$
$$\left.+\mathbf{I}\left(\mathbf{I}-D_0\left(\mathbf{D}^{eff}\right)^{-1}\right)\right]+$$
$$+\alpha_4\left[\left(\mathbf{I}-D_0\left(\mathbf{D}^{eff}\right)^{-1}\right)\cdot\mathbf{J}+\right.$$
$$\left.+\mathbf{J}\cdot\left(\mathbf{I}-D_0\left(\mathbf{D}^{eff}\right)^{-1}\right)\right]$$

при использовании соотношений (12);
здесь

$$\alpha_1=\frac{s_1\left(B_2-B_1\right)-s_3B_1}{\left(B_2-B_1\right)\left(2B_1+B_2\right)},$$
$$\alpha_2=\frac{s_2\left(B_2-B_1\right)-s_4B_1}{\left(B_2-B_1\right)\left(2B_1+B_2\right)},$$
$$\alpha_3=\frac{s_3}{2\left(B_2-B_1\right)},$$
$$\alpha_4=\frac{s_4}{2\left(B_2-B_1\right)}.$$

Соотношения между эффективным модулем Юнга и эффективным коэффициентом диффузии материала с порами

Для определения взаимосвязи между эффективными упругими модулями и эффективными коэффициентами диффузии необходимо использовать компонентное представление выражений (13) и (14). В случае изотропного материала будут иметь место следующие соотношения:

$$\frac{E^{eff}}{E_0}=\left[1+\left(3\alpha_1+3\alpha_2+\right.\right.$$
$$\left.\left.+2\alpha_3+2\alpha_4\right)\left(\frac{D^{eff}}{D_0}-1\right)\right]^{-1} \tag{15}$$

при использовании тензорного выражения (13) и

$$\frac{E^{eff}}{E_0}=\left[1+\left(3\alpha_1+3\alpha_2+\right.\right.$$
$$\left.\left.+2\alpha_3+2\alpha_4\right)\left(1-\frac{D_0}{D^{eff}}\right)\right]^{-1} \tag{16}$$

при использовании тензорного выражения (14).

Соотношения (15) и (16) выражают зависимость одного эффективного модуля от другого на макроуровне. Необходимая информация о микроструктуре сводится к определению формы отдельной неоднородности, поскольку от нее зависят коэффициенты α_i. В общем случае соотношения (15) и (16) являются приближенными, поскольку они получены с использованием приближенного выражения для эффективного тензора податливости (10).

Изотропному материалу, содержащему неоднородности, соответствуют два случая:

они имеют сферическую форму,

они распределены по ориентациям произвольным образом.

Соотношения (15) и (16) являются точными в первом случае, поскольку $\delta = 0$ и, следовательно, приближенное выражение для эффективного тензора податливости (10) совпадает с точным. Во втором случае $\delta \neq 0$ и выражения (15), (16) являются приближенными.

Исследуем два этих случая и оценим точность полученных приближенных соотношений.

Определим по формулам (15), (16) связь между эффективным модулем Юнга и эффективным коэффициентом диффузии материала со сферическими порами и сравним полученное выражение с прямо вычисляемым.

В случае матрицы с порами коэффициенты тензора вклада неоднородности в податливость h_i имеют вид

$$h_1 = \frac{q_6}{2\Delta},\ h_2 = \frac{1}{q_2},\ h_3 = -\frac{q_3}{\Delta},$$
$$h_4 = -\frac{q_4}{\Delta},\ h_5 = \frac{4}{q_5},\ h_6 = \frac{2q_1}{\Delta}, \qquad (17)$$

где $\Delta = 2(q_1 q_6 - q_3 q_4)$ и

$$q_1 = \mu\left[4\kappa - 1 - 2(3\kappa - 1) f_0 - 2\kappa f_1\right],$$
$$q_2 = 2\mu\left[1 - (2-\kappa) f_0 - \kappa f_1\right],$$
$$q_3 = q_4 = 2\mu\left[(2\kappa - 1) f_0 + 2\kappa f_1\right],$$
$$q_5 = 4\mu\left[f_0 + 4\kappa f_1\right],$$
$$q_6 = 8\mu\kappa\left[f_0 - f_1\right],$$
$$\kappa = (1-\nu)/2;$$

μ — модуль сдвига матрицы; ν — коэффициент Пуассона матрицы; f_0, f_1 — функции, зависящие от формы сфероидальной неоднородности, т. е. от отношения длин полуосей сфероида $\gamma = a_3/a$ (a_3 — полуось вращения) как

$$f_0 = \frac{1-g}{2\left(1-\gamma^{-2}\right)},$$
$$f_1 = \frac{1}{4\left(1-\gamma^{-2}\right)^2}\left[\left(2+\gamma^{-2}\right)g - 3\gamma^{-2}\right],$$

где

$$g = \begin{cases} \dfrac{1}{\gamma\sqrt{1-\gamma^2}}\arctan\dfrac{\sqrt{1-\gamma^2}}{\gamma}, \gamma \le 1 \\ \dfrac{1}{2\gamma\sqrt{\gamma^2-1}}\ln\left(\dfrac{\gamma+\sqrt{\gamma^2-1}}{\gamma-\sqrt{\gamma^2-1}}\right), \gamma \ge 1. \end{cases}$$

Коэффициенты тензора вклада в диффузию имеют вид

$$B_1 = \frac{1-\lambda}{s\lambda + (1-s\lambda) f_0}, \qquad (18)$$

$$B_2 = \frac{1-\lambda}{1-2(1-s\lambda) f_0}, \qquad (18)$$

где $\lambda = D_0/D_1$.

Тогда выражения (15) и (16) сведутся соответственно к равенствам

$$\frac{E^{eff}}{E_0} = \left[1 + \frac{(1-\nu)(9+5\nu)}{2(7-5\nu)} \times \right.$$
$$\left. \times \frac{1+2s\lambda}{1-\lambda}\left(\frac{D}{D_0} - 1\right)\right]^{-1},$$
$$\frac{E^{eff}}{E_0} = \left[1 + \frac{(1-\nu)(9+5\nu)}{2(7-5\nu)} \times \right. \qquad (19)$$
$$\left. \times \frac{1+2s\lambda}{1-\lambda}\left(1 - \frac{D_0}{D}\right)\right]^{-1}.$$

Чтобы получить прямую взаимосвязь между эффективными модулями, выразим объемную долю неоднородностей непосредственно через эффективный коэффициент диффузии, определяемый с помощью метода гомогенизации без учета взаимодействия пор, и подставим в точное выражение для эффективного тензора податливости, определяемого также без учета взаимодействия.

Так, тензоры вклада сферической неоднородности в диффузию и в сопротивляемость определяются выражениями

$$\mathbf{H}_p^D = \frac{3(1-\lambda)}{2s\lambda+1} D_0 \mathbf{I},$$
$$\mathbf{H}_p^{DR} = -\frac{3(1-\lambda)}{(2s\lambda+1) D_0}\mathbf{I}. \qquad (20)$$

Подстановка первого и второго выражений (20) соответственно в уравнение для эффективного тензора диффузии (7) и эффективного тензора сопротивляемости (8) позволит выразить объемную долю неоднородностей через эффективные диффузионные свойства.

Последующая подстановка полученного выражения для ρ в уравнение для эффективного тензора податливости (2), с учетом формулы для изотропного тензора вклада сферической поры в податливость, т. е.

$$\mathbf{H}_p = \frac{15(1-\nu)}{2\mu}\left[\frac{1}{10(1+\nu)}\frac{1}{3}\mathbf{I}\cdot\mathbf{I}+ + \frac{1}{7-5\nu}\left(\mathbf{J}-\frac{1}{3}\mathbf{I}\cdot\mathbf{I}\right)\right], \quad (21)$$

приведет к результату, в точности совпадающему с выражениями (19).

Таким образом, выполнена проверка полученных приближенных соотношений для случая микроструктуры, при которой они являются точными.

Во втором случае, соответствующем изотропному материалу (при произвольном распределении неоднородностей по ориентациям), соотношения (15) и (16) являются приближенными. При этом точную взаимосвязь между эффективными упругими и диффузионными свойствами можно установить для случая произвольного распределения сфероидов по ориентациям независимо, по аналогии с тем, как это делалось выше для случая сферических неоднородностей.

Для количественной и качественной оценок полученных нами приближенных соотношений, сравним их с точными, определенными для конкретной микроструктуры.

Для установления точных соотношений определим объемную долю неоднородностей через эффективный коэффициент диффузии изотропного материала и затем подставим полученное выражение в уравнение для определения эффективного модуля Юнга. Адекватность такого подхода обусловлена изотропией эффективных тензоров, в результате которой единственным общим микроструктурным параметром, определяющим эффективные свойства материала, является скалярный параметр ρ. При использовании метода гомогенизации без учета взаимодействия в терминах тензоров вклада в диффузию, получается следующее выражение, связывающее эффективный модуль Юнга с эффективным коэффициентом диффузии:

$$\frac{E^{eff}}{E_0} = \left[1+\frac{E_0 h_\Sigma}{15\eta}\left(\frac{D^{eff}}{D_0}-1\right)\right]^{-1}, \quad (22)$$

а при использовании этого же метода в терминах тензоров вклада в диффузию выражение имеет вид:

$$\frac{E^{eff}}{E_0} = \left[1+\frac{E_0 h_\Sigma}{15\eta}\left(1-\frac{D_0}{D^{eff}}\right)\right]^{-1}, \quad (23)$$

где $h_\Sigma = 8h_1 + 4h_2 + 4h_3 + 2h_5 + 3h_6$,
$\eta = 2B_1/3 + B_2/3$.

Сравнение результатов, полученных с помощью приближенных соотношений (15), (16), с результатами, полученными на основании точных соотношений (22) и (23) соответственно, представлены на рис. 1 для случая $\lambda = 0$, что соответствует $D_1 \to \infty$ (в этом случае параметр сегрегации, как следует из соотношения (18), не играет роли), $E_0 = 208$ ГПа.

Видно, что соотношения (15) и (16) достаточно точно описывают связь между эффективными свойствами на макроуровне. При этом эффективные значения, полученные через тензоры вклада в сопротивляемость диффузии (рис. 1, *a*) и через тензоры вклада в диффузию (рис. 1, *b*), различаются. Это связано с тем, что соотношения получены без учета взаимовлияния неоднородностей.

Для получения точных соотношений с учетом взаимовлияния неоднородностей обратимся к методу гомогенизации Максвелла [3]. Результат, полученный с помощью этого метода через тензоры вклада в диффузию, совпадает с результатом, полученным через тензоры вклада в сопротивляемость и, таким образом, результат однозначен, в отличие от метода гомогенизации без учета взаимодействия.

Модуль Юнга материала со сфероидальными порами определялся нами в статье [15], а эффективный коэффициент диффузии такого материала – в статье [16]. Для получения точных соотношений необходимо

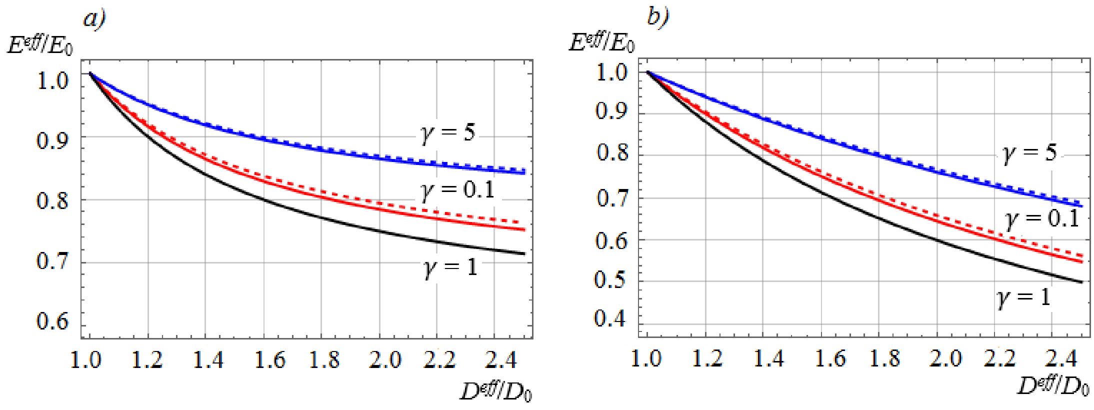


Рис. 1. Зависимости относительного эффективного модуля Юнга от относительного эффективного коэффициента диффузии при использовании соотношений податливость-сопротивляемость диффузии (*a*) и податливость-диффузия (*b*) для различных значений отношения длин полуосей сфероида γ. Сравниваются приближенные соотношения (сплошные линии) с точными (пунктиры)

подставить выражение для объемной доли включений

$$\rho = 3\frac{D^{eff} - D_0}{\left(D^{eff} + 2D_0\right)\eta}$$

в выражение для эффективного модуля Юнга.

Сравнение установленных в данной работе приближенных соотношений с точными соотношениями, полученными в рамках схемы Максвелла, представлено на рис. 2 для случая $\lambda = 0$, $E_0 = 208$ ГПа.

Анализ графиков на рис. 2 позволяет заключить, что предпочтительнее использовать соотношения, построенные с помощью тензоров вклада в диффузию, поскольку они лучше совпадают с точным соотношением, построенным с использованием схемы Максвелла.

Исследуя влияние сегрегации на взаимосвязь между эффективными свойствами материала, учтем, что коэффициент диффузии пор намного больше коэффициента диффузии матрицы ($D_1 >> D_0$), но при этом не бесконечен; такое предположение соответствует реальному материалу. Примем для определенности, что $\lambda = 0{,}01$, $E_0 = 208$ ГПа. Зависимость от параметра сегрегации неявно присутствует в выражениях (15), (16) только в коэффициенте η, поскольку

$$3\alpha_1 + 3\alpha_2 + 2\alpha_3 + 2\alpha_4 = \frac{3\left(s_1 + s_2\right) + s_3 + s_4}{3\eta};$$

этот же коэффициент можно выделить и в самом выражении для эффективного тензора диффузии.

Зависимость коэффициента η от параметра сегрегации при разных значениях отношения длин полуосей сфероида показана на рис. 3.

Видно, что сегрегация не оказывает заметного эффекта при наличии сферических пор. В случае сплюснутых и вытянутых сфероидальных пор влияние сегрегации более выражено, что сказывается и на эффективных коэффициентах диффузии [14, 16]. При этом, согласно зависимостям, изображенным на рис. 4, сегрегация не оказывает заметного влияния непосредственно на связь между эффективными свойствами (графики построены для соотношений, основанных на связи податливость-диффузия). Таким образом, еще одним преимуществом использования установленной взаимосвязи между эффективными свойствами в явном виде является ее независимость от того, оседают частицы диффундирующего вещества в порах или нет — достаточно информации об

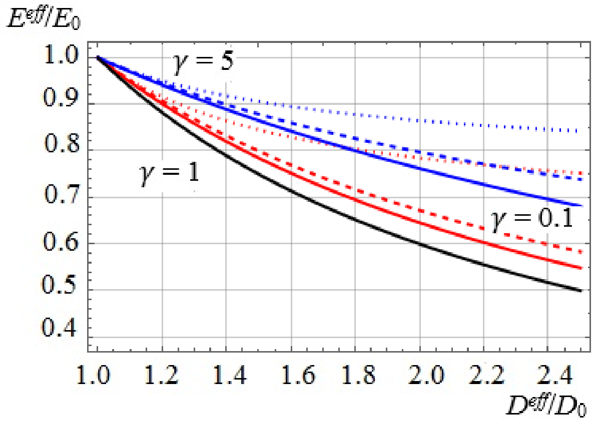


Рис. 2. Сравнение приближенных соотношений податливость-диффузия (сплошные линии) и податливость-сопротивляемость (точечные линии) с точными, полученными в рамках схемы Максвелла (пунктирные линии)

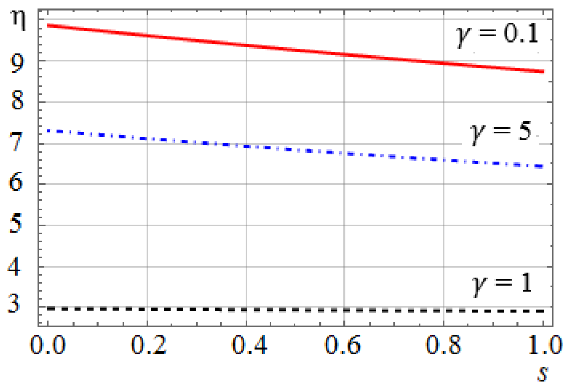


Рис. 3. Зависимость коэффициента η от параметра сегрегации при разных значениях отношения длин полуосей сфероида γ

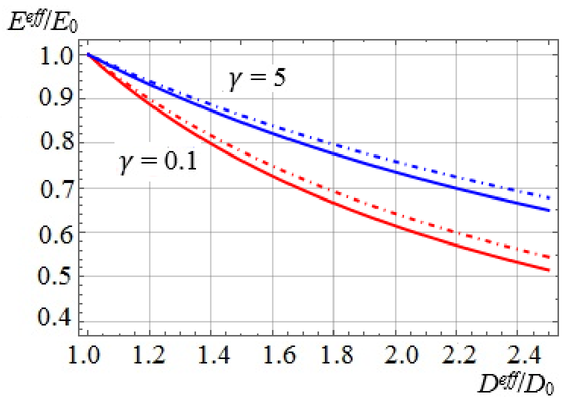


Рис. 4. Зависимости относительного эффективного модуля Юнга от относительного эффективного коэффициента диффузии при двух значениях отношения длин полуосей сфероида γ и параметра сегрегации *s*: 1,00 (сплошная линия) и 0,01 (штрихпунктир)

эффективных свойствах материала (упругих или диффузионных).

Заключение

В работе в явном виде получены соотношения, устанавливающие связь между эффективными упругими и диффузионными свойствами материала. Полученные зависимости целесообразно использовать для определения изменений одних свойств через другие, когда неизвестна микроструктура материала.

При выводе соотношений использовалась известная (из литературы) методика, изложенная в терминах тензоров вклада для определения взаимосвязи между эффективными упругими и теплопроводящими свойствами. В полученных в настоящей статье зависимостях учтен эффект сегрегации, принципиально отличающий процесс диффузии от процесса теплопроводности.

Подробно исследован случай изотропного материала с порами, в которых может оседать диффундирующее вещество. Показано, что для этого случая установленные соотношения достаточно точно описывают зависимость эффективного упругого модуля Юнга от эффективного коэффициента диффузии.

На основании сравнения указанных результатов с полученными в рамках метода Максвелла, который учитывает взаимовлияние множественных неоднородностей, сделан вывод о предпочтительном применении выражений, связывающих податливость материала с диффузионной проводимостью, а не с сопротивляемостью.

Проанализировано влияние сегрегации на взаимосвязь между эффективными свойствами материала. Показано, что учет сегрегации через задание соответствующего параметра не оказывает в данном случае заметного влияния, что доказывает преимущество использования полученных соотношений при определении одних свойств через другие на макроуровне, поскольку отпадает необходимость эмпирического определения величины параметра сегрегации.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 20-08-01100).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Berryman J.G., Milton G.W.** Microgeometry of random composites and porous media // Journal of Physics D: Applied Physics. 1988. Vol. 21. No. 1. Pp. 87–94.

2. **Gibiansky L.V., Torquato S.** Connection between the conductivity and bulk modulus of isotropic composite materials // Proceedings of the Royal Society of London. Series A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences. 1996. Vol. 452. No. 1945. Pp. 253–283.

3. **Kachanov M., Sevostianov I.** Micromechanics of materials, with applications. Berlin, Germany: Springer, 2018. Vol. 249. 712 p.

4. **Sevostianov I., Kachanov M.** Explicit cross-property correlations for anisotropic two-phase composite materials // Journal of the Mechanics and Physics of Solids. 2002. Vol. 50. No. 2. Pp. 253–282.

5. **Sevostianov I., Kachanov M.** Connections between elastic and conductive properties of heterogeneous materials // Advances in Applied Mechanics. Vol. 42. Edited by H. Aref, E. van der Giessen. USA: Elsevir, 2009. Pp. 69–252.

6. **Mazloum A., Oddone V., Reich S., Sevostianov I.** Connection between strength and thermal conductivity of metal matrix composites with uniform distribution of graphite flakes // International Journal of Engineering Science. 2019. Vol. 139. June. Pp. 70–82.

7. **Sevostianov I.** On the thermal expansion of composite materials and cross-property connection between thermal expansion and thermal conductivity // Mechanics of Materials. 2012. Vol. 45. February. Pp. 20–33.

8. **Mazloum A., Sevostianov I.** Connections between anisotropic tensors of thermal conductivity and thermal expansion coefficients // International Journal of Engineering Science. 2018. Vol. 122. January. Pp. 1–13.

9. **Anisimova M.A., Knyazeva A.G., Sevostia-**

nov I. Connection between diffusion coefficient and thermal conductivity of a metal matrix composite // IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. 2017. Vol. 175. No. 1. P. 012051.

10. **Anisimova M., Knyazeva A., Sevostianov I.** Effective thermal properties of an aluminum matrix composite with coated diamond inhomogeneities // International Journal of Engineering Science. 2016. Vol. 106. September. Pp. 142–154.

11. **Mazloum A., Kováčik J., Emmer Š., Sevostianov I.** Copper-graphite composites: Thermal expansion, thermal and electrical conductivities, and cross-property connections // Journal of Materials Science. 2016. Vol. 51. No. 17. Pp. 7977–7990.

12. **Zhang Y., Liping L.** On diffusion in heterogeneous media // American Journal of Science. 2012. Vol. 312. No. 9. Pp. 1028–1047.

13. **Kaur I., Mishin Y., Gust W.** Fundamentals of grain and interphase boundary diffusion. 3rd revised and enlarged edition. John Wiley & Sons. Inc., 1995. 528 p.

14. **Knyazeva A.G., Grabovetskaya G.P., Mishin I.P., Sevostianov I.** On the micromechanical modelling of the effective diffusion coefficient of a polycrystalline material // Philosophical Magazin. 2015. Vol. 95. No. 19. Pp. 2046–2066.

15. **Фролова К.П.** Определение эффективного модуля Юнга среды с микроструктурой, характерной для водородной деградации // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2020. Т. 13. № 2. С. 160–174.

16. **Frolova K.P., Vilchevskaya E.N.** Effective diffusion coefficient of a porous material applied to the problem of hydrogen damage (Chapter 7) // Polyanskiy V.A., Belyaev A.K. (Eds.). Advances in Hydrogen Embrittlement Study. Springer, Cham., 2021. Advanced Structured Materials. Vol. 143. Pp. 113–130.

Статья поступила в редакцию 19.01.2021, принята к публикации 01.02.2021.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРЕ

ФРОЛОВА Ксения Петровна – *младший научный сотрудник Института проблем машиноведения РАН, Санкт-Петербург, Российская Федерация; ассистент Высшей школы теоретической механики Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.*

199178, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Большой проспект В.О., 61

kspfrolova@gmail.com

REFERENCES

1. **Berryman J.G., Milton G.W.,** Microgeometry of random composites and porous media, Journal of Physics D: Applied Physics. 21(1) (1988) 87–94.

2. **Gibiansky L.V., Torquato S.,** Connection between the conductivity and bulk modulus of isotropic composite materials, Proceedings of the Royal Society of London. Series A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences. 452 (1945) (1996) 253–283.

3. **Kachanov M., Sevostianov I.,** Micromechanics of materials, with applications, Vol. 249, Springer, Berlin, Germany, 2018.

4. **Sevostianov I., Kachanov M.,** Explicit cross-property correlations for anisotropic two-phase composite materials, Journal of the Mechanics and Physics of Solids. 50 (2) (2002) 253–282.

5. **Sevostianov I., Kachanov M.,** Connections between elastic and conductive properties of heterogeneous materials, In the book: Advances in Applied Mechanics, Edited by H. Aref, E. van der Giessen, Elsevir, USA. 42 (2009) 69–252.

6. **Mazloum A., Oddone V., Reich S., Sevostianov I.,** Connection between strength and thermal conductivity of metal matrix composites

with uniform distribution of graphite flakes, International Journal of Engineering Science. 139 (June) (2019) 70–82.

7. **Sevostianov I.,** On the thermal expansion of composite materials and cross-property connection between thermal expansion and thermal conductivity, Mechanics of Materials. 45 (February) (2012) 20–33.

8. **Mazloum A., Sevostianov I.,** Connections between anisotropic tensors of thermal conductivity and thermal expansion coefficients, International Journal of Engineering Science. 122 (January) (2018) 1–13.

9. **Anisimova M.A., Knyazeva A.G., Sevostianov I.,** Connection between diffusion coefficient and thermal conductivity of a metal matrix composite, IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. 175 (1) (2017) 012051.

10. **Anisimova M., Knyazeva A., Sevostianov I.,** Effective thermal properties of an aluminum matrix composite with coated diamond inhomogeneities, International Journal of Engineering Science. 106 (September) (2016) 142–154.

11. **Mazloum A., Kováčik J., Emmer Š., Sevostianov I.,** Copper-graphite composites: Thermal expansion, thermal and electrical conductivities, and cross-property connections, Journal of Materials Science. 51 (17) (2016) 7977–7990.

12. **Zhang Y., Liping L.,** On diffusion in heterogeneous media, American Journal of Science. 312 (9) (2012) 1028–1047.

13. **Kaur I., Mishin Y., Gust W.,** Fundamentals of grain and interphase boundary diffusion, 3rd revised and enlarged edition, John Wiley & Sons. Inc., 1995.

14. **Knyazeva A.G., Grabovetskaya G.P., Mishin I.P., Sevostianov I.,** On the micromechanical modelling of the effective diffusion coefficient of a polycrystalline material, Philosophical Magazin. 95 (19) (2015) 2046–2066.

15. **Frolova K.P.,** Determination of the effective Young's modulus of medium with microstructure typical for hydrogen degradation, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 13 (2) (2020) 160–174.

16. **Frolova K.P., Vilchevskaya E.N.,** Effective diffusion coefficient of a porous material applied to the problem of hydrogen damage, Ch. 7, In the book: Polyansky V.A., Belyaev A.K. (Eds.). Advances in Hydrogen Embrittlement Study, Springer, Cham., 2021, Advanced Structured Materials, Vol. 143, Pp. 113–130.

Received 19.01.2021, accepted 01.02.2021.

THE AUTHOR

FROLOVA Ksenia P.

Institute for Problems in Mechanical Engineering RAS

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University

61 Bolshoi Ave. of V. Isl., St. Petersburg, 199178, Russian Federation

kspfrolova@gmail.com

Научное издание

НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ ВЕДОМОСТИ САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА. ФИЗИКО-МАТЕМАТИЧЕСКИЕ НАУКИ

«ST. PETERSBURG STATE POLYTECHNICAL UNIVERSITY JOURNAL. PHYSICS AND MATHEMATICS»
ТОМ 14, № 1, 2021

Учредитель и издатель – Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого»

Журнал зарегистрирован Федеральной службой по надзору в сфере информационных технологий и массовых коммуникаций (Роскомнадзор).
Свидетельство о регистрации ПИ № ФС77-51457 от 19.10.2012 г

Телефон редакции 294-22-85

Сайт http://ntv.spbstu.ru

E-mail: physics@spbstu.ru

Компьютерная верстка *А.А. Кононовой*

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого
Адрес университета: 195251, Санкт-Петербург, ул. Политехническая, д. 29.

УСЛОВИЯ ПУБЛИКАЦИИ СТАТЕЙ

в журнале «Научно-технические ведомости

Санкт-Петербургского государственного политехнического университета.

Физико-математические науки»

1. ОБЩИЕ ПОЛОЖЕНИЯ

Журнал «Научно-технические ведомости Санкт-Петербургского государственного политехнического университета. Физико-математические науки» является периодическим печатным научным рецензируемым изданием. Зарегистрирован в Федеральной службе по надзору в сфере информационных технологий и массовых коммуникаций (Свидетельство ПИ №ФС77-52144 от 11 декабря 2012 г.) и распространяется по подписке агентства «Роспечать» (индекс издания 71823).

С 2008 года журнал издавался в составе сериального издания "Научно-технические ведомости СПбГПУ". **Сохраняя преемственность и продолжая научные и публикационные традиции сериального издания «Научно-технические ведомости СПбГПУ», журнал издавали под сдвоенными международными стандартными сериальными номерами ISSN 1994-2354 (сериальный) 2304-9782.** В 2012 году он зарегистрирован как самостоятельное периодическое издание **ISSN 2304-9782** (Свидетельство о регистрации ПИ № ФС77-52144 от 11 декабря 2012 г.). С 2012 г. начат выпуск журнала в двуязычном оформлении.

Издание входит в Перечень ведущих научных рецензируемых журналов и изданий (перечень ВАК) и принимает для печати материалы научных исследований, а также статьи для опубликования основных результатов диссертаций на соискание ученой степени доктора наук и кандидата наук по следующим основным научным направлениям: **Физика, Математика, Механика**, включая следующие шифры научных специальностей: 01.02.04, 01.02.05, 01.04.01, 01.04.02, 01.04.03, 01.04.04, 01.04.05, 01.04.06, 01.04.07, 01.04.10, 01.04.15, 01.04.21.

Журнал представлен в Реферативном журнале ВИНИТИ РАН и включен в фонд научно-технической литературы (НТЛ) ВИНИТИ РАН, а также в международной системе по периодическим изданиям «Ulrich's Periodicals Directory». Индексирован в базах данных «Российский индекс научного цитирования» (РИНЦ), Web of Science (Emerging Sources Citation Index).

Периодичность выхода журнала – 4 номера в год.

Редакция журнала соблюдает права интеллектуальной собственности и со всеми авторами научных статей заключает издательский лицензионный договор.

2. ТРЕБОВАНИЯ К ПРЕДСТАВЛЯЕМЫМ МАТЕРИАЛАМ

2.1. Оформление материалов

1. Рекомендуемый объем статей – 12-20 страниц формата А-4 с учетом графических вложений. Количество графических вложений (диаграмм, графиков, рисунков, фотографий и т.п.) не должно превышать шести.

2. Число авторов статьи, как правило, не должно превышать пяти человек.

3. Авторы должны придерживаться следующей обобщенной структуры статьи: вводная часть (актуальность, существующие проблемы – объем 0,5 – 1 стр.); основная часть (постановка и описание задачи, методика исследования, изложение и обсуждение основных результатов); заключительная часть (предложения, выводы – объем 0,5 – 1 стр.); список литературы (оформление по ГОСТ 7.0.5-2008).

В списки литературы **рекомендуется** включать ссылки на научные статьи, монографии, сборники статей, сборники конференций, электронные ресурсы с указанием даты обращения, патенты.

Как правило, **нежелательны** ссылки на диссертации и авторефераты диссертаций (такие ссылки допускаются, если результаты исследований еще не опубликованы, или не представлены достаточно подробно).

В списки литературы **не рекомендуется** включать ссылки на учебники, учебно-методические пособия, конспекты лекций, ГОСТы и др. нормативные документы, на законы и постановления, а также на архивные документы (если все же необходимо указать такие источники, то они оформляются в виде сносок).

Рекомендуемый объем списка литературы для обзорных статей – не менее 50 источников, для остальных статей – не менее 10.

Доля источников давностью менее 5 лет должна составлять не менее половины. Допустимый процент самоцитирования – не выше 10 – 20. Объем ссылок на зарубежные источники должен быть не менее 20%.

4. УДК (UDC) оформляется и формируется в соответствии с ГОСТ 7.90-2007.

5. Набор **текста** осуществляется в редакторе **MS Word**.

6. **Формулы** набираются в редакторе MathType (не во встроенном редакторе Word) (мелкие формулы, символы и обозначения набираются без использования редактора формул). **Таблицы** набираются в том же формате, что и основной текст. В тексте буква «ё» заменяется на букву «е» и оставляется только в фамилиях.

7. **Рисунки** (в формате .tiff, .bmp, .jpeg) и **таблицы** оформляются в виде отдельных файлов. Рисунки представляются только в черно-белом варианте. Шрифт – **Times New Roman**, размер шрифта основного текста – 14, интервал – 1,5. Таблицы большого размера могут быть набраны кеглем 12. Параметры страницы: поля слева – 3 см, сверху и снизу – 2 см, справа – 1,5 см. Текст размещается без переносов. Абзацный отступ – 1 см.

2.2. Представление материалов

1. Представление всех материалов осуществляется в электронном виде через электронную редакцию (http://journals.spbstu.ru). После регистрации в системе электронной редакции автоматически формируется персональный профиль автора, позволяющий взаимодействовать как с редакцией, так и с рецензентом.

2. Вместе с материалами статьи должно быть представлено экспертное заключение о возможности опубликования материалов в открытой печати.

3. Файл статьи, подаваемый через электронную редакцию, должен содержать только сам текст без названия, списка литературы, аннотации и ключевых слов, фамилий и сведений об авторах. Все эти поля заполняются отдельно через электронную редакцию.

2.3. Рассмотрение материалов

Предоставленные материалы (п. 2.2) первоначально рассматриваются редакционной коллегией и передаются для рецензирования. После одобрения материалов, согласования различных вопросов с автором (при необходимости) редакционная коллегия сообщает автору решение об опубликовании статьи. В случае отказа в публикации статьи редакция направляет автору мотивированный отказ.

При отклонении материалов из-за нарушения сроков подачи, требований по оформлению или как не отвечающих тематике журнала материалы не публикуются и не возвращаются.

Редакционная коллегия не вступает в дискуссию с авторами отклоненных материалов.

При поступлении в редакцию значительного количества статей их прием в очередной номер может закончиться ДОСРОЧНО.

Более подробную информацию можно получить по телефону редакции:
(812) 294-22-85 с 10.00 до 18.00 – Бушманова Наталья Александровна
или по e-mail: physics@spbstu.ru