УДК 539.2+537.226
DOI: 10.18384-2310-7251-2018-2-61-75

НЕЛИНЕЙНЫЕ КИНЕТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ ПРИ ПОЛЯРИЗАЦИИ ТВЁРДЫХ ДИЭЛЕКТРИКОВ

Калытка В.А.
Карагандинский государственный технический университет
100000, г. Караганда, бульвар Мира, д. 56, Республика Казахстан

Аннотация. Методами квазиклассической кинетической теории исследуются нелинейные кинетические явления, при поляризации протонных полупроводников и диэлектриков (ППД), в широком интервале изменения температур (1–1500 К) и полей (100 кВ/м–1000 МВ/м), в радиочастотном диапазоне (1 кГц–10 МГц). Исследуется влияние нелинейностей уравнений исходной феноменологической модели диэлектрической релаксации (в ППД – протонной релаксации) на механизм формирования объёмно-зарядовой поляризации в твёрдых диэлектриках. Из решения нелинейной системы уравнений Фоккера-Планка и Пуассона (для модели блокирующих электродов), построены рекуррентные формулы, позволяющие, в любом приближении теории возмущений, рассчитать комплексные амплитуды релаксационных мод, генерируемых на произвольных, кратных основной, частотах переменного поля. Анализируется влияние на поляризацию диэлектрика нелинейностей высокого (начиная с третьего) порядка по полю, что актуально в области сильных полей (10 МВ/м–1000 МВ/м) и сверхнизких температур (1–10 К).

Ключевые слова: протонные полупроводники и диэлектрики (ППД), методы квазиклассической кинетической теории, нелинейное кинетическое уравнение протонной релаксации и протонной проводимости, комплексные амплитуды релаксационных мод, нелинейные по полю компоненты поляризации.

NONLINEAR KINETIC PHENOMENA UNDER POLARIZATION IN SOLID DIELECTRICS

V. Kalytka
Karaganda State Technical University
bulvar Mira 56, 100000 Karaganda, Republic of Kazakhstan

Abstract. Based on the methods of quasi-classical kinetic theory we have investigated the nonlinear kinetic phenomena during polarization of proton semiconductors and dielectrics (PSCD) in a wide range of temperatures (1–1500 K) and fields (100 kV/m–1000 MV/m), as well as in the radio frequency range (1 kHz–10 MHz). The influence of nonlinearities of the equations of the initial phenomenological model of dielectric relaxation (in PSCD-proton relaxation) on the mechanism of formation of space-charge polarization in solid dielectrics is studied. Using the solution of the system of Fokker–Planck and Poisson equations (for the blocking electrodes model) we have constructed recurrence formulas, which allow one, in any approximation of perturbation theory, to calculate the complex amplitudes of the relaxation modes generated at arbitrary multiple fundamental frequencies of the variable (alternating) field. The influence of high nonlinearities (from the third order) by the polarizing field on the dielectric polarization is analyzed, which is important in the range of strong fields (10 MV/m–1000 MV/m) and ultra-low temperatures (1–10 K).

Key words: proton semiconductors and dielectrics (PSCD), methods of the quasi-classical kinetic theory, nonlinear kinetic equation of proton relaxation and proton conductivity, complex amplitudes of relaxation modes, frequency harmonics of polarization, polarization components nonlinear due to the polarizing field.

Введение

Аналитическое исследование *нелинейной* релаксационной поляризации является актуальным для электрофизики и электротехники прикладным научным направлением, позволяющим, в широком диапазоне напряженностей поляризующего поля (100 кВ/м–1000 МВ/м) и температур (1–1500 К), выявить закономерности поведения спектров токов термостимулированной поляризации и диэлектрических потерь в материалах класса протонных полупроводников и диэлектриков (ППД) [1–4]. Особый интерес представляет область *аномально высоких нелинейностей*, проявляющихся в ППД в диапазоне сверхнизких (гелиевых) температур (1–10 К) в области слабых полей (100 кВ/м–1000 кВ/м) и сверхвысоких температур (550–1500 К) в области сильных полей (10 МВ/м–1000 МВ/м) [1]. Условия такого типа можно определить как экстремальные для работы разнородных функциональных элементов технологических схем электротехнических (контрольно-измерительных, электронно-вычислительных и др.) и силовых (изоляционные покрытия токоотводящих элементов электрогенераторов и трансформаторов ТЭС) установок и систем [3].

Научно-практическая значимость нелинейных элементов на основе ППД более детально освещена в [1] и относится к космическим технологиям, нанотехнологиям, технике высоких напряжений и альтернативной энергетике [2–6].

В [1] выполнен детальный анализ влияния параметров источника напряжения (амплитуда, частота ЭДС), температуры и толщины диэлектрика на свойства спектров *комплексной диэлектрической проницаемости* (КДП) $\hat{\varepsilon}^{(\omega)}(T)$ для ППД. Теоретически обнаружены нелинейные поляризационные эффекты, проявляющиеся в виде *взаимодействия релаксационных мод*, на основной частоте поля ω [3].

Физико-математическая модель нелинейной релаксационной поляризации. Постановка задачи исследования

В [3] получены *нелинейные*, с точностью до кубического члена (по малому параметру γ [3]), решения квазиклассического кинетического уравнения, совместно с уравнением Пуассона, для модели блокирующих электродов. Методом математической индукции в бесконечном приближении теории возмущений на основной частоте ω вычислена частотная гармоника поляризации $P^{(\omega)}(t)$ [3], построены и детально исследованы *нелинейные* частотно-температурные спектры КДП [1]. При этом следующую за $P^{(\omega)}(t)$ гармонику поляризации $P^{(3\omega)}(t)$, кратную частоте 3ω, по методологии [1; 3], рассчитать уже не удаётся.

Цель данной работы, в продолжение работ [1–3], сводится к разработке *обобщённых (для любого приближения теории возмущений)* методов *аналитического* исследования влияния *нелинейностей кинетических уравнений* исходной *феноменологической модели* [3] на механизм формирования *объёмно-зарядового распределения* в кристаллах с водородными связями (КВС). Развиваемая нами модель формально будет применима к описанию *нелинейных поляризационных* кинетических явлений и в других твёрдых диэлектриках, схожих с КВС по типу структуры кристаллической решётки и по механизму *ионной проводимости*, в основном, для случая диффузионного переноса *слабосвязанных ионов (при энергиях активации $U_0 \approx (0{,}01 \div 1)$ эВ)* по местам закрепления (состояниям равновесия) в электрическом поле. В отличие от [1; 3], расчет k-ой компоненты объёмной плотности заряда $\rho_k(\xi;\tau)$ будет проводиться из *рекуррентного выражения,* пригодного *в любом приближении теории возмущений*, а результаты [1; 3] будут рассматриваться как частные случаи *обобщённого метода*.

Поскольку для КВС, условие $\varsigma_0 = \dfrac{qE_0a}{k_BT} < 1$ работает практически во всём теоретическом диапазоне изменения параметров E_0, T, условие $\gamma = \dfrac{\varsigma_0 W^{(1)}}{W^{(0)}} < 1$, с учётом $\dfrac{W^{(1)}}{W^{(0)}} \le 1$ [1], выполняется для любого набора параметров релаксаторов U_0, N_0, ν_0, δ_0, задействованных в объёмно-зарядовой поляризации. Здесь: E_0 – модуль напряжённости переменного электрического поля; a – параметр кристаллической решетки; q– заряд иона (в КВС – протона) [1]; U_0 – энергия активации (высота потенциального барьера); δ_0 – ширина потенциального барьера; ν_0 –частота собственных колебаний релаксатора (иона) в потенциальной яме; N_0 – равновесная концентрация релаксаторов [4].

Для КВС влияние температуры на механизм релаксационного движения ионов водорода (протонов) отражено в кинетических коэффициентах $W^{(l)}(U_0, \delta_0, \nu_0, T)$, вычисляемых в l-приближении теории возмущений, с учётом как термически активируемых (классических), так и туннельных (квантовых) переходов протонов [4]:

$$W^{(l)}(T) = \frac{\nu_0}{2}\left(\exp(-X) + \left\langle D^{(l)} \right\rangle\right), \ \left\langle D^{(l)} \right\rangle = \frac{\Lambda^l \exp(-\Lambda) - X^l \exp(-X)}{X^{l-1}(X-\Lambda)}. \quad (1)$$

где $X = \dfrac{U_0}{k_BT}$, $\Lambda = \dfrac{\pi\delta_0\sqrt{mU_0}}{\eta\sqrt{2}}$, m – масса протона [4].

Исследования нелинейного кинетического уравнения

Феноменологическая модель диффузионного переноса ионов в диэлектрике (в КВС – протонов) в поляризующем электрическом поле строится на основании системы *нелинейных* уравнений типа Фоккера-Планка и Пуассона (выражения (11), (14) из [3]):

$$\frac{\partial \rho}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 \rho}{\partial \xi^2} - \theta\rho - \gamma \frac{\partial}{\partial \xi}(\rho z), \tag{2}$$

$$\frac{\partial z}{\partial \xi} = \varphi\rho, \tag{3}$$

с учётом начальных и граничных условий [3]:

$$\rho(\xi, 0) = 0, \tag{4}$$

$$\left.\frac{\partial \rho}{\partial \xi}\right|_{\xi=\left\{0;\frac{d}{a}\right\}} = \gamma(N_0 + \rho) z\Big|_{\xi=\left\{0;\frac{d}{a}\right\}}, \tag{5}$$

$$\int_0^{d/a} z(\xi;\tau)\, d\xi = \frac{d}{a}\exp\left(\frac{i\omega}{W^{(0)}}\tau\right). \tag{6}$$

В (2)–(6) приняты обозначения: $\rho(\xi;\tau) = N(x;t) - N_0$ есть концентрация *ионов,* избыточная над их равновесной концентрацией N_0; $z(\xi;\tau) = \frac{E(x;t)}{E_0}$, $\xi = \frac{x}{a}$ – безразмерная координата, $\tau = W^{(0)}t$ – безразмерное время; $\gamma = \frac{\mu_{mob}^{(1)} a E_0}{D_{diff}^{(0)}}$ – малый параметр теории возмущений; $D_{diff}^{(0)} = a^2 W^{(0)}$, $\mu_{mob}^{(1)} = \frac{q a^2 W^{(1)}}{k_B T}$ – коэффициенты диффузии и подвижности для протонов [1]; $\theta = \varphi\gamma N_0$, $\varphi = \frac{aq}{\varepsilon_0 \varepsilon_\infty E_0}$, ε_∞ – высокочастотная диэлектрическая проницаемость кристалла; d-толщина диэлектрика [3].

Авторами [3] решения системы уравнений (2)–(6) строятся методами теории возмущений, с помощью степенных рядов [3]:

$$\rho(\xi;\tau) = \sum_{k=1}^{+\infty} \gamma^k \rho_k(\xi;\tau), \quad z(\xi;\tau) = \sum_{k=0}^{+\infty} \gamma^k z_k(\xi;\tau), \tag{7}$$

в третьем приближении по параметру γ. На основании функций $\rho_1(\xi;\tau)$, $\rho_2(\xi;\tau)$, $\rho_3(\xi;\tau)$ методом математической индукции в [3] построены рекуррентные формулы для расчёта релаксационных мод $\rho_k^{(\omega)}(\xi,\tau)$, $\rho_k^{(2\omega)}(\xi,\tau)$ – компонент объёмной плотности заряда $\rho(\xi;\tau)$, вычисленные в k-ом приближении теории возмущений, соответственно на частотах ω, 2ω переменного поля (выражения

(18), (19) из [3]). На этом основании вычислены первые две частотные гармоники $\rho^{(\omega)}(\xi;\tau)$ и $\rho^{(2\omega)}(\xi;\tau)$ функции $\rho(\xi;\tau)$ – выражения (20), (21) из [3] и частотные гармоники поляризации [3]:

$$P^{(\omega)}(t)=\frac{8aqN_0\gamma}{\pi^2\left(1-\frac{8\varphi N_0\Lambda_0\gamma}{\pi^2}\right)}\times\sum_{n=1}^{+\infty}\left[\frac{\sin^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)}{n^2\left(\frac{1}{\tau_n}+i\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)}\right]\times\exp\left(\frac{i\omega\tau}{W^{(0)}}\right);\ \ P^{(2\omega)}(t)=0. \quad (8)$$

В (8) $\tau_n=\frac{\tau_{n,D}\tau_M}{\tau_{n,D}+\tau_M}$ – безразмерное время релаксации для n-ой релаксационной моды; $\tau_{n,D}=\frac{\tau_D}{n^2}$ – диффузионное время релаксации для n-ой моды, $\tau_D=\left(\frac{d}{\pi a}\right)^2$, $\tau_M=\frac{1}{\theta}=\frac{\varepsilon_0\varepsilon_\infty W^{(0)}}{qN_0\mu_{mob}^{(1)}}$ – максвелловское время релаксации [3].

Коэффициент $\Lambda_0=\sum_{s=1}^{\infty}\frac{\sin^2\left(\frac{\pi s}{2}\right)}{s^2\left(\frac{1}{\tau_s}+i\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)}$ [3] в дальнейшем будем определять как *параметр взаимодействия релаксационных мод* на основной частоте ω.

Попытка применить аналогичный метод к расчёту функции $\rho(\xi;\tau)$ в приближении k на частоте 3ω даёт настолько громоздкие выражения $\rho_4^{(3\omega)}(\xi,\tau)$, $\rho_5^{(3\omega)}(\xi,\tau)$ и т.д., что вывод *рекуррентной формулы* $\rho_k^{(3\omega)}(\xi,\tau)$ требует применения *принципиально нового*, более *общего*, подхода. Первым и наиболее простым членом этого ряда является выражение $\rho_3^{(3\omega)}(\xi,\tau)$, сформулированное в [3].

Перейдём к реализации *общего аналитического метода*. Тогда подстановка рядов (7) в систему (2)–(6) даёт:

$$\frac{\partial\rho_k}{\partial\tau}=\frac{\partial^2\rho_k}{\partial\xi^2}-\frac{\partial}{\partial\xi}\left(z_0\rho_{k-1}+\sum_{m=1}^{k-2}z_m\rho_{k-m-1}\right)-\theta\rho_k, \quad (9)$$

$$\frac{\partial z_k}{\partial\xi}=\varphi\rho_k, \quad (10)$$

$$\rho_k(\xi;0)=0, \quad (11)$$

$$\left.\frac{\partial\rho_k}{\partial\xi}\right|_{\xi=\left(0;\frac{d}{a}\right)}=\left.\left[N_0z_{k-1}+z_0\rho_{k-1}+\sum_{m=1}^{k-2}z_m\rho_{k-m-1}\right]\right|_{\xi=\left(0;\frac{d}{a}\right)}. \quad (12)$$

Здесь $\rho_0(\xi;\tau) = 0$, $z_0(\xi;\tau) = \exp\left(\frac{i\omega}{W^{(0)}}\tau\right)$ [3]. Во всех последующих приближениях:

$$\int_0^{d/a} z_k(\xi;\tau)\,d\xi = 0,\ k \geq 1 \tag{13}$$

Разлагаем $\rho_k(\xi;\tau)$ в ряд Фурье по ортогональным функциям $\cos\left(\frac{\pi n a}{d}\xi\right)$ на отрезке $0 \leq \xi \leq \frac{d}{a}$:

$$\rho_k(\xi;\tau) = \sum_{n=1}^{\infty} \Re_k(n,\tau)\cdot\cos\left(\frac{\pi n a}{d}\xi\right). \tag{14}$$

Функция $\rho_{k,n}(\xi;\tau) = \Re_k(n,\tau)\cdot\cos\left(\frac{\pi n a}{d}\xi\right)$ имеет смысл релаксационной моды n-го порядка k-го приближения теории возмущений; $\Re_k(n,\tau) = \frac{2a}{d}\int_0^{d/a}\rho_k(\xi;\tau)\cos\left(\frac{\pi n a}{d}\xi\right)d\xi$ – комплексная амплитуда релаксационной моды $\rho_k(\xi;\tau)$. Согласно (14) перепишем (10) в виде операторного уравнения:

$$\frac{\partial\Re_k(n,\tau)}{\partial\tau} + \frac{1}{\tau_n}\Re_k(n,\tau) = \frac{2a}{d}\left\{N_0\left(z_{k-1}\Big|_{\xi=\frac{d}{a}}\cdot(-1)^n - z_{k-1}\Big|_{\xi=0}\right) - \right.$$
$$\left. -\frac{\pi n a}{d}\int_0^{d/a}\left(z_0\rho_{k-1} + \sum_{m=1}^{k-2} z_m\rho_{k-m-1}\right)\sin\left(\frac{\pi n a}{d}\xi\right)d\xi\right\}, \tag{15}$$

где $\frac{1}{\tau_n} = \frac{\pi^2 n^2 a^2}{d^2} + \theta$. Интегрируя (15) с учётом $\Re_k(n;0) = 0$, получаем:

$$\Re_k(n;\tau) = \left\{-\frac{2aN_0}{d}\left(1-(-1)^n\right)\cdot\int_0^{\tau} z_{k-1}(0;\tau')\cdot\exp\left(\frac{\tau'}{\tau_n}\right)d\tau' - \right.$$
$$\left. -\frac{2a}{d}\cdot\frac{\pi n a}{d}\int_0^{\tau}\left(\int_0^{d/a}\left(z_0\rho_{k-1} + \sum_{m=1}^{k-2} z_m\rho_{k-m-1}\right)\sin\left(\frac{\pi n a}{d}\xi\right)d\xi \times \exp\left(\frac{\tau'}{\tau_n}\right)\right)d\tau'\right\}\times$$
$$\times\exp\left(-\frac{\tau}{\tau_n}\right). \tag{16}$$

Подставляя (14) в первое уравнение из (7) имеем:

$$\rho\left(\xi;\tau\right)=\sum_{n=1}^{\infty}\sum_{k=1}^{\infty}\gamma^{k}\Re_{k}\left(n,\tau\right)\cdot\cos\left(\frac{\pi na}{d}\xi\right). \tag{17}$$

Представим (7) в виде:

$$\rho(\xi,\tau)=\sum_{r=1}^{\infty}\sum_{k=r}^{\infty}\gamma^{k}\rho_{k}^{(r\omega)}(\xi,\tau), \tag{18}$$

Компонентами разложения (18) являются релаксационные моды k-го порядка теории возмущений $\rho_{k}^{(r\omega)}\left(\xi;\tau\right)$, генерируемые на частотах $r\omega$ соответственно:

$$\rho_{k}^{(r\omega)}\left(\xi;\tau\right)=\sum_{n=1}^{\infty}\Re_{k}^{(r\omega)}\left(n,\tau\right)\cdot\cos\left(\frac{\pi na}{d}\xi\right). \tag{19}$$

Выражение (19) имеет смысл суперпозиции релаксационных мод $\rho_{k,n}^{(r\omega)}\left(\xi;\tau\right)=\Re_{k}^{(r\omega)}\left(n,\tau\right)\cdot\cos\left(\frac{\pi na}{d}\xi\right)$ соответственно n-го порядка, вычисленных в

k-ом приближении теории возмущений (по малому параметру γ).

Комбинируя (18) и (19) пишем:

$$\rho(\xi,\tau)=\sum_{n=1}^{\infty}\sum_{r=1}^{\infty}\sum_{k=r}^{\infty}\gamma^{k}\Re_{k}^{(r\omega)}\left(n,\tau\right)\cdot\cos\left(\frac{\pi na}{d}\xi\right), \tag{20}$$

Сопоставляя (17) и (20), получаем равенство, устанавливающее связь между комплексными амплитудами вида $\Re_k(n,\tau)$ и $\Re_{k}^{(r\omega)}\left(n,\tau\right)$. Тогда:

$$\sum_{k=1}^{\infty}\gamma^{k}\Re_{k}\left(n,\tau\right)=\sum_{r=1}^{\infty}\sum_{k=r}^{\infty}\gamma^{k}\Re_{k}^{(r\omega)}\left(n,\tau\right). \tag{21}$$

На основании (18), полагая $\rho(\xi,\tau)=\sum_{r=1}^{\infty}\rho^{(r\omega)}(\xi,\tau)$, с учётом (20), получим разложение частотной гармоники номера r для функции $\rho(\xi;\tau)$, в степенной ряд по степеням параметра γ:

$$\rho^{(r\omega)}(\xi,\tau)=\sum_{n=1}^{\infty}\sum_{k=r}^{\infty}\gamma^{k}\Re_{k}^{(r\omega)}\left(n,\tau\right)\cdot\cos\left(\frac{\pi na}{d}\xi\right). \tag{22}$$

Представив (7) в виде $\rho(\xi,\tau)=\sum_{k=1}^{\infty}\sum_{r=1}^{k}\gamma^{k}\rho_{k}^{(r\omega)}(\xi,\tau)$, с учётом (19) получаем выражение $\rho(\xi,\tau)=\sum_{n=1}^{\infty}\sum_{k=1}^{\infty}\sum_{r=1}^{k}\gamma^{k}\Re_{k}^{(r\omega)}\left(n,\tau\right)\cdot\cos\left(\frac{\pi na}{d}\xi\right)$, которое, в комплексе с (17), даёт:

$$\Re_k(n,\tau)=\sum_{r=1}^{k}\Re_k^{(r\omega)}(n,\tau). \quad (23)$$

Кратные частоте $r\omega$ комплексные амплитуды $\Re_k^{(r\omega)}(n,\tau)$ запишем в виде рекуррентной по параметрам r, $k \geq r$ формулы, построение которой будем проводить согласно (23), полагая в стационарном режиме поляризации, $\Re_k^{(r\omega)}(n,\tau)\to G_k^{(\Omega_r)}(n)\cdot\exp(ir\omega t)$, где $t=\dfrac{\tau}{W^{(0)}}$, $G_k^{(\Omega_r)}(n)$ – некоторая комплексная функция номеров n, k, вычисляемая на множестве частот $\Omega_r=\{\omega; 2\omega; 3\omega; \ldots; (r-2)\omega; (r-1)\omega; r\omega\}$. Тогда из (16), с учётом (23), получаем обобщённое рекуррентное выражение:

$$\Re_k^{(r\omega)}(n,\tau)=\frac{8N_0\varphi}{\pi^2}\sum_{s=1}^{\infty}\left\{\frac{\sin^2\left(\frac{\pi s}{2}\right)\sin^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)}{s^2}\times\left[\hat{K}^{(\tau)}\left(\Re_{k-1}^{(r\omega)}(s,\tau')\right)\right]\right\}-$$

$$-\frac{4a}{d}\cdot\sum_{s=1}^{\infty}\left\{\frac{n^2\cos^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)\sin^2\left(\frac{\pi s}{2}\right)}{n^2-s^2}\times\left[\hat{K}^{(\tau)}\left(\exp\left(i\frac{\omega}{W^{(0)}}\tau'\right)\Re_{k-1}^{((r-1)\omega)}(s,\tau')\right)\right]\right\}+$$

$$+\frac{8\varphi}{\pi^2}\sum_{m=1}^{k-2}\sum_{p=1}^{\infty}\sum_{f=1}^{m}\sum_{l=1}^{\infty}\left\{\frac{n^2\cos^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)\sin^2\left(\frac{\pi p}{2}\right)\sin^2\left(\frac{\pi l}{2}\right)}{l^2\left(n^2-p^2\right)}\times\right.$$

$$\left.\times\left[\hat{K}^{(\tau)}\left(\Re_{k-m-1}^{((r-f)\omega)}(p,\tau')\Re_m^{(f\omega)}(l,\tau')\right)\right]\right\}. \quad (24)$$

В (24) используются интегральные операторы:

$$\hat{K}^{(\tau)}\left(\Re_{k-1}^{(r\omega)}(s,\tau')\right)=\exp\left(-\frac{\tau}{\tau_n}\right)\cdot\int_0^{\tau}\Re_{k-1}^{(r\omega)}(s,\tau')\exp\left(\frac{\tau'}{\tau_n}\right)d\tau'\to\frac{\Re_{k-1}^{(r\omega)}(s,\tau)}{\frac{1}{\tau_n}+i\left(r\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)},$$

$$\hat{K}^{(\tau)}\left(\exp\left(i\frac{\omega}{W^{(0)}}\tau'\right)\Re_{k-1}^{((r-1)\omega)}(s,\tau')\right)=$$

$$=\exp\left(-\frac{\tau}{\tau_n}\right)\cdot\int_0^{\tau}\Re_{k-1}^{((r-1)\omega)}(s,\tau')\exp\left(\left(i\frac{\omega}{W^{(0)}}+\frac{1}{\tau_n}\right)\tau'\right)d\tau'\to$$

$$\to \frac{\Re_{k-1}^{((r-1)\omega)}(s,\tau)\cdot \exp\left(i\frac{\omega}{W^{(0)}}\tau\right)}{\frac{1}{\tau_n}+i\left(r\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)},$$

$$\hat{K}^{(\tau)}\left(\Re_{k-m-1}^{((r-f)\omega)}(p,\tau')\Re_m^{(f\omega)}(l,\tau')\right)=$$

$$=\exp\left(-\frac{\tau}{\tau_n}\right)\cdot\int_0^\tau \Re_{k-m-1}^{((r-f)\omega)}(p,\tau')\Re_m^{(f\omega)}(l,\tau')\exp\left(\frac{\tau'}{\tau_n}\right)d\tau' \to$$

$$\to \frac{\Re_{k-m-1}^{((r-f)\omega)}(p,\tau)\Re_m^{(f\omega)}(l,\tau)}{\frac{1}{\tau_n}+i\left(r\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)}.$$

Генерация релаксационных мод с комплексными амплитудами $\Re_k^{(\omega)}(n,\tau)$ начинается с первого порядка теории возмущений $k \ge 1$, при $r = 1$. Тогда из (24) получаем рекуррентную формулу:

$$\Re_k^{(\omega)}(n,\tau) = -\frac{4aN_0}{d}\times\left(\frac{8N_0\varphi}{\pi^2}\right)^{k-1}\times\sin^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)\times\Lambda_0^{k-1}\times\frac{\exp\left(i\frac{\omega}{W^{(0)}}\tau\right)}{\frac{1}{\tau_n}+i\frac{\omega}{W^{(0)}}}. \quad (24.1)$$

Начиная со второго порядка теории возмущений $k \ge 2$, при $r = 2$, из (24) получаем:

$$\Re_k^{(2\omega)}(n,\tau) = (k-1)\left(\frac{4a}{d}\right)^2 n_0\left(\frac{8N_0\varphi}{\pi^2}\right)^{k-2}\times$$

$$\times\Lambda_0^{k-2}\cdot n^2\cos^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)\times\wp_2(n)\times\frac{\exp\left(2i\frac{\omega}{W^{(0)}}\tau\right)}{\frac{1}{\tau_n}+i\left(2\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)}, \quad (24.2)$$

где $\wp_2(n) = \sum_{s=1}^{\infty}\frac{\sin^2\left(\frac{\pi s}{2}\right)}{(n^2-s^2)\left(\frac{1}{\tau_s}+i\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)}$.

Начиная с третьего порядка теории возмущений $k \ge 3$, при $r = 3$, имеем:

$$\Re_k^{(3\omega)}(n,\tau) = -\left(\frac{4a}{d}\right)^3 n_0\left(\frac{8N_0\varphi}{\pi^2}\right)^{k-3}\times$$

$$\times\left\{\frac{(k-1)(k-2)}{2}\Lambda_0^{k-3}\cdot n^2\wp_3(n)+\Lambda_1\sin^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)\times\sum_{g=3}^{k-1}\frac{(g-1)(g-2)}{2}\Lambda_0^{g-3}\cdot\Lambda_2^{k-g-1}\right\}\times$$

$$\times\frac{\exp\left(3i\frac{\omega}{W^{(0)}}\tau\right)}{\frac{1}{\tau_n}+i\left(3\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)}. \tag{24.3}$$

В (24.3) приняты сокращённые обозначения:

$$\wp_3(n)=\sum_{m=1}^{\infty}\left\{\frac{m^2\wp_2(m)\cos^2\left(\frac{\pi m}{2}\right)\sin^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)}{\left(n^2-m^2\right)\left(\frac{1}{\tau_m}+i\left(2\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)\right)}\right\},\quad \Lambda_1=\sum_{p=1}^{\infty}\left\{\frac{\wp_3(p)\cdot\sin^2\left(\frac{\pi p}{2}\right)}{\frac{1}{\tau_p}+i\left(3\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)}\right\},$$

$$\Lambda_2=\sum_{p=1}^{\infty}\left\{\frac{\sin^2\left(\frac{\pi p}{2}\right)}{\frac{1}{\tau_p}+i\left(3\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)}\right\}.$$

На основании (22), при $r = 1$, $r = 2$, с учётом (24.1), (24.2), подтверждаем выражения (20), (21) из [3].

При $r = 3$, из (22), с учётом (24.3) получаем:

$$\rho^{(3\omega)}(\xi,\tau)=-\frac{64a^3N_0\gamma^3}{d^3\left(1-\frac{8N_0\varphi\Lambda_0\gamma}{\pi^2}\right)^3}\times\sum_{n=1}^{\infty}\left\{n^2\wp_3(n)+\frac{8N_0\varphi\Lambda_1\gamma}{\pi^2}\cdot\frac{\sin^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)}{1-\frac{8N_0\varphi\Lambda_2\gamma}{\pi^2}}\right\}\times$$

$$\times\frac{\exp\left(3i\frac{\omega}{W^{(0)}}\tau\right)}{\frac{1}{\tau_n}+i\left(3\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)}\times\cos\left(\frac{\pi n a}{d}\xi\right). \tag{25}$$

Установленные из численных расчётов условия $\Xi_0=\frac{8N_0\varphi\Lambda_0\gamma}{\pi^2}<1$, $\Xi_1=\frac{8N_0\varphi\Lambda_1\gamma}{\pi^2}<<1$, $\Xi_2=\frac{8N_0\varphi\Lambda_2\gamma}{\pi^2}<<1$, позволяют упростить формулу (25):

$$\rho^{(3\omega)}(\xi,\tau)=-\frac{64a^3N_0\gamma^3}{d^3\left(1-\Xi_0\right)^3}\times\sum_{n=1}^{\infty}n^2\wp_3(n)\times\frac{\exp\left(3i\frac{\omega}{W^{(0)}}\tau\right)}{\frac{1}{\tau_n}+i\left(3\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)}\times\cos\left(\frac{\pi n a}{d}\xi\right). \tag{26}$$

Дальнейшие вычисления, при значениях параметра $r \geq 4$, во всех последующих приближениях теории возмущений $k \geq r$, с учётом условий

$\Xi_i = \dfrac{8N_0\varphi\Lambda_i\gamma}{\pi^2} << 1$, $\Xi_{i+1} < \Xi_i$, где $i = 1, 2, ..., r-2, r-1$, на основании (24), дают:

$$\Re_k^{(r\omega)}(n,\tau) = (-1)^r\left(\frac{4a}{d}\right)^r N_0\left(\frac{8N_0\varphi}{\pi^2}\right)^{k-r}\times$$
$$\times\Lambda_0^{k-r}\cdot G^{(\Omega_r)}(n)\times A_r(k)\times\frac{\exp\left(ir\dfrac{\omega}{W^{(0)}}\tau\right)}{\dfrac{1}{\tau_n}+i\left(r\dfrac{\omega}{W^{(0)}}\right)}. \tag{27}$$

В (27) $A_r(k)$ – функция параметров k, r. В частности: $r = 1$, $A_1(k) = 1$; $r = 2$, $A_2(k) = k - 1$; $r = 3$, $A_3(k) = \dfrac{(k-1)(k-2)}{2}$. При любых значениях r выполняется равенство $\sum_{k=r}^{\infty}\left[\Xi_0^{k-r}\cdot A_r(k)\right] = \dfrac{1}{(1-\Xi_0)^r}$. Комплексная функция $G^{(\Omega_r)}(n)$ строится для двух случаев. При $r = 2\lambda + 1$, где $\lambda = \{0, 1, 2, ...\}$, имеем

$$G_1^{(\Omega_r)}(n) = n^2\cdot\sin^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)\times G_1^{(\omega_r)}(n),$$

$$G_1^{(\omega r)}(n) = \sum_{n_1=1}^{\infty}\sum_{n_2=1}^{\infty}\dots\sum_{n_{r-2}=1}^{\infty}\sum_{n_{r-1}=1}^{\infty}\left(\frac{\prod_{j=2}^{r-1}n_j^2\cdot\prod_{j=1}^{0,5\cdot(r-1)}\cos^2\left(\dfrac{\pi n_{2j}}{2}\right)\sin^2\left(\dfrac{\pi n_{2j-1}}{2}\right)}{\left(n^2-n_{r-1}^2\right)\prod_{j=2}^{r-1}\left(n_j^2-n_{j-1}^2\right)\prod_{j=1}^{r-1}\left(\dfrac{1}{\tau_{n_j}}+i\dfrac{j\omega}{W^{(0)}}\right)}\right). \tag{27.1}$$

При $r = 2\lambda$, $\lambda = \{1, 2, ...\}$, соответственно

$$G_2^{(\Omega_r)}(n) = n^2\cdot\cos^2\left(\frac{\pi n}{2}\right)\times G_2^{(\omega r)}(n),$$

$$G_2^{(\omega r)}(n) = \sum_{n_1=1}^{\infty}\sum_{n_2=1}^{\infty}\dots\sum_{n_{r-2}=1}^{\infty}$$
$$\sum_{n_{r-1}=1}^{\infty}\left(\frac{\prod_{j=2}^{r-1}n_j^2\cdot\prod_{j=1}^{0,5(r-2)}\sin^2\left(\dfrac{\pi n_{2j+1}}{2}\right)\cos^2\left(\dfrac{\pi n_{2j}}{2}\right)\sin^2\left(\dfrac{\pi n_{2j-1}}{2}\right)}{\left(n^2-n_{r-1}^2\right)\prod_{j=2}^{r-1}\left(n_j^2-n_{j-1}^2\right)\prod_{j=1}^{r-1}\left(\dfrac{1}{\tau_{n_j}}+i\dfrac{j\omega}{W^{(0)}}\right)}\right). \tag{27.2}$$

Подстановка (27) в (22) даёт:

$$\rho^{(r\omega)}(\xi,\tau) = \frac{4^r a^r N_0\gamma^r(-1)^r}{d^r(1-\Xi_0)^r}\times\sum_{n=1}^{\infty}G^{(\Omega_r)}(n)\times\frac{\exp\left(ir\dfrac{\omega}{W^{(0)}}\tau\right)}{\dfrac{1}{\tau_n}+i\left(r\dfrac{\omega}{W^{(0)}}\right)}\times\cos\left(\frac{\pi na}{d}\xi\right). \tag{28}$$

Выражение (28), с учётом дополнительных формул (27.1), (27.2), при значениях параметра $r = 1$, $r = 2$, совпадает с выражениями (20), (21) из [3], а в случае $r = 3$, согласуется с (25) при выполнении условий $\Xi_1 << 1$, $\Xi_2 << 1$, что можно рассматривать как критерий достоверности развиваемого в данной работе метода исследований.

Нелинейная по полю поляризация диэлектрика

Вычисление частотных гармоник поляризации [3]:

$$P^{(r\omega)}(\tau) = \frac{q}{d}\int_0^d x\rho^{(r\omega)}(\xi,\tau)dx, \qquad (29)$$

согласно (28), с учётом (27.1), (27.2), при $r = 2\lambda$, даёт $P^{(r\omega)}(\tau) = 0$, а при $r = 2\lambda + 1$, имеем:

$$P^{(r\omega)}(\tau) = \frac{2^{2r+1}a^r q N_0 \gamma^r}{d^{r-1}\pi^2(1-\Xi_0)^r} \times \sum_{n=1}^{\infty} G_1^{(\omega r)}(n) \times \frac{\exp\left(ir\frac{\omega}{W^{(0)}}\tau\right)}{\frac{1}{\tau_n} + i\left(r\frac{\omega}{W^{(0)}}\right)} \times \sin^2\left(\frac{\pi n}{2}\right). \qquad (30)$$

Выражение (30), в дополнение к (8), подтверждает, что нечётные по номеру r релаксационные моды $\rho_k^{((2\lambda+1)\omega)}(\xi,\tau)$ дают ненулевой вклад в поляризацию. При этом чётные по номеру r моды $\rho_k^{(2\lambda\omega)}(\xi,\tau)$ вклад в поляризацию не вносят.

Численный расчёт по формулам (28), (30) позволит более детально, проанализировать влияние *нелинейных эффектов высокого (начиная с третьего) порядка* r по полю на поляризацию в зависимости от значений параметров U_0, N_0, ν_0, δ_0 [4] и толщины диэлектрика.

Физические условия проявления этих нелинейностей в ППД реализуются в диапазоне: сверхнизких температур (1–10 К) и слабых полей (100 кВ/м–1000 кВ/м); сверхвысоких температур (550–1500 К) и сильных полей (100 МВ/м–1000 МВ/м) [1; 2].

Дальнейшие аналитические исследования позволят с помощью формулы (30) рассчитать комплексную диэлектрическую проницаемость (КДП) с учётом нелинейностей *высокого порядка* r по полю [6]. В [1] анализ теоретических спектров КДП выполнен в приближении $r = 1$.

Область практического применения результатов данной работы, кроме электротехники и радиотехники (создание СВЧ-генераторов путём утроения частот радиодиапазона) [2; 4], также затрагивает вопросы нелинейной оптики (фемптосекундные лазеры, оптические манипуляторы света, детекторы направления падающего излучения, дифференциальные фазовые и частотные анализаторы [7–13]) и электрохимических технологий (при разработке твёрдотельных электролитов на основе протонных проводников [6; 14]).

Выводы

1. Выполнен анализ основных положений физико-математической модели *нелинейной релаксационной поляризации* в КВС [1–4]. Установлено, что существующие методы [1; 3] оказываются некорректными при попытке расчёта поляризации диэлектрика с учётом *нелинейностей высокого (начиная с третьего) порядка r* по полю.

2. Получено *обобщённое* (для любого приближения теории возмущений k) рекуррентное выражение (24) для расчёта *комплексных амплитуд* $\Re_k^{(r\omega)}(n,\tau)$ *релаксационных мод*, *генерируемых,* в стационарном режиме поляризации, на произвольной частоте $r\omega$ (19).

3. Построено рекуррентное выражение для поляризации (30), устанавливающейся в диэлектрике на частоте $r\omega$, что актуально для теоретических исследований спектров комплексной диэлектрической проницаемости (КДП) в областях *аномально высоких нелинейностей*, проявляющихся при значениях параметра $r > 3$.

Статья поступила в редакцию 17.04.2018 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Калытка В.А., Коровкин М.В., Мехтиев А.Д., Алькина А.Д. Детальный анализ нелинейных диэлектрических потерь в протонных полупроводниках и диэлектриках // Вестник Московского государственного областного университета. Серия: Физика-математика. 2017. № 4. С. 39–54.
2. Калытка В.А. Математическое описание нелинейной релаксационной поляризации в диэлектриках с водородными связями // Вестник Самарского университета. Естественнонаучная серия. 2017. Т. 23. №3. С. 71–83.
3. Калытка В.А., Баймуханов З.К., Мехтиев А.Д. Нелинейные эффекты при поляризации диэлектриков со сложной кристаллической структурой // Доклады Академии наук высшей школы Российской Федерации. 2016. № 3 (32). С. 7–21.
4. Калытка В.А., Коровкин М.В. Дисперсионные соотношения для протонной релаксации в твердых диэлектриках // Известия Вузов. Физика. 2016. Т. 59, №12. С. 150–159. at
5. Demin A.K., Dunyushkina L.A. SOFC efficiency at non standard conditions // Proceedings on the Fifth International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells. 1997. 2–5 June, Aachen, Germany. Pennington, NJ, USA: The Electrochemical Society Inc., 1997. pp. 1349–1358.
6. Khromushin I.V., Aksenova T.I., Baykov Yu.M. Regularities of oxygen and water thermal desorption from barium cerate doped by neodymium, samarium, and gadolinium // Russian Journal of Electrochemistry. 2017. Vol. 53. No. 6. pp. 647–650.
7. Cao T, Wang S. Topological insulator metamaterials with tunable negative refractive index in the optical region // Nanoscale Research Letters. 2013. Vol. 8(526). pp. 1–8.
8. Kudyshev Zh., Reddy H., Guler U., Kildishev A.V., Shalaev V.M., Boltasseva A. Temperature-dependent optical properties of plasmonic titanium nitride thin films // ACS Photonics. 2017. Vol. 4(6). pp. 1413–1420.
9. Zhaxylyk A., Kudyshev Zh., Wells B.M., Litchinitser N.M., Podolskiy V.A. Nonlocal Effects in Transition Hyperbolic Metamaterials // ACS Photonics. 2017. Vol. 4(10). pp. 2470–2478.

10. Кулагин И.А., Ганеев Р.А., Тугушев Р.И., Ряснянский А.И., Усманов Т. Компоненты тензора нелинейных восприимчивостей третьего порядка нелинейно-оптических кристаллов KDP, DKDP и $LiNbO_3$ // Квантовая электроника. 2004. Т. 34, № 7. С. 657–662.
11. Hart S., Ren H., Wagner T., Leubner Ph., Mühlbauer M., Brüne Ch., Buhmann H., Molenkamp L.W., Yacoby A. Induced superconductivity in the quantum spin Hall edge // Nature Physics. 2014. Vol. 10. pp. 638–643.
12. Wells B.M., Zayats A.V., Podolskiy V.A. Nonlocal optics of plasmonic nanowire metamaterials // Physical Review B. 2014. Vol. 89. P. 035111 (4).
13. Ziegler J.F., Biersack J.P., Ziegler M.D., SRIM: The Stopping and Range of Ions in Matter. 2012. 398 p.
14. Хромушин И.В., Аксенова Т.И. Влияние низкоэнергетических ионов аргона на проводящие свойства YSZ // Вестник Национального ядерного центра Республики Казахстан. 2017. Вып. 1. С. 55–61.

REFERENCES

1. Kalytka V.A., Korovkin M.V., Mekhtiev A.D., Al'kina A.D. Detal'nyi analiz nelineinykh dielektricheskikh poter' v protonnykh poluprovodnikakh i dielektrikakh [A detailed analysis of nonlinear dielectric losses in proton semiconductors and dielectrics]. In: *Vestnik Moskovskogo gosudarstvennogo oblastnogo universiteta. Seriya: Fizika-matematika* [Bulletin of Moscow Region State University. Series: Physics and Mathematics], 2017, no. 4, pp. 39–54.
2. Kalytka V.A. Matematicheskoe opisanie nelineinoi relaksatsionnoi polyarizatsii v dielektrikakh s vodorodnymi svyazyami [The mathematical description of the nonlinear relaxation of polarization in dielectrics with hydrogen bonds]. In: *Vestnik Samarskogo universiteta. Estestvennonauchnaya seriya* [Vestnik of Samara University. Natural Science Series], 2017, vol. 23, no. 3, pp. 71–83.
3. Kalytka V.A., Baimukhanov Z.K., Mekhtiev A.D. Nelineinye effekty pri polyarizatsii dielektrikov so slozhnoi kristallicheskoi strukturoi [Nonlinear effects in the polarization of dielectrics with a complex crystal structure]. In: *Doklady akademii nauk vysshei shkoly Rossiiskoi Federatsii* [Proceedings of the Russian Higher School Academy of Sciences], 2016, no. 3 (32), pp. 7–21.
4. Kalytka V.A., Korovkin M.V. Dispersionnye sootnosheniya dlya protonnoi relaksatsii v tverdykh dielektrikakh [Dispersion relations for proton relaxation in solid dielectrics]. In: *Izvestiya Vuzov. Fizika* [Russian Physics Journal], 2016, vol. 59, no. 12, pp. 150–159.
5. Demin A., Denyushkina L.A. SOFC efficiency at non standard conditions. In: *Proceedings on the Fifth International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells. 1997. 2–5 June. Aachen*, *Germany*. Pennington, NJ, USA, The Electrochemical Society Inc. Publ., 1997. pp. 1349–1358.
6. Khromushin I.V., Aksenova T.I., Baykov Yu.M. Regularities of oxygen and water thermal desorption from barium cerate doped by neodymium, samarium, and gadolinium. In: *Russian Journal of Electrochemistry*, 2017, vol. 53, no. 6, pp. 647–650.
7. Cao T, Wang S. Topological insulator metamaterials with tunable negative refractive index in the optical region. In: *Nanoscale Research Letters*, 2013, vol. 8(526), pp. 1–8.
8. Kudyshev Zh., Reddy H., Guler U., Kildishev A.V., Shalaev V.M., Boltasseva A. Temperature-dependent optical properties of plasmonic titanium nitride thin films. In: *ACS Photonics*, 2017, vol. 4(6), pp. 1413–1420.
9. Zhaxylyk A. Kudyshev Zh., Wells B.M., Litchinitser N.M., Podolskiy V.A. Nonlocal Effects in Transition Hyperbolic Metamaterials. In: *ACS Photonics*, 2017, vol. 4(10), pp. 2470–2478.

10. Kulagin I.A., Ganeev R.A., Tugushev R.I., Ryasnyanskii A.I., Usmanov T. Komponenty tenzora nelineynykh vospriimchivostei tret'yego poryadka nelineyno-opticheskikh kristallov KDP, DKDP i $LiNbO_3$ [Components of the third-order nonlinear susceptibility tensors in KDP, DKDP and $LiNbO_3$ nonlinear optical crystals]. In: *Kvantovaya elektronika* [Quantum Electronics], 2004, vol. 34, no. 7, pp. 657–662.
11. Hart S., Ren H., Wagner T., Leubner Ph., Mühlbauer M., Brüne Ch., Buhmann H., Molenkamp L.W., Yacoby A. Induced superconductivity in the quantum spin Hall edge. In: *Nature Physics*, 2014, vol. 10, pp. 638–643.
12. Wells B.M., Zayats A.V., Podolskiy V.A. Nonlocal optics of plasmonic nanowire metamaterials. In: *Physical Review* B, 2014, vol. 89, P. 035111(4).
13. Ziegler J.F., Biersack J.P., Ziegler M.D. *SRIM: The Stopping and Range of Ions in Matter*. 2012. 398 p.
14. Khromushin I.V., Aksenova T.I. Vliyanie nizkoenergeticheskikh ionov argona na provodyashchie svoystva YSZ [Influence of low energy argon ions on the conductive properties of YSZ]. In: *Vestnik Natsional'nogo yadernogo tsentra Respubliki Kazakhstan* [Bulletin of National nuclear center of the Republic of Kazakhstan. 2017], 2017, iss. 1, pp. 55–61.

ИНФОРМАЦИЯ ОБ АВТОРЕ

Калытка Валерий Александрович – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры энергетических систем Карагандинского государственного технического университета;
e-mail: kalytka@mail.ru

INFORMATION ABOUT THE AUTHOR

Valerii A. Kalytka – PhD in Physical and Mathematical Sciences, associate professor at the Department of Power Systems, Karaganda State Technical University;
e-mail: kalytka@mail.ru

ПРАВИЛЬНАЯ ССЫЛКА НА СТАТЬЮ

Калытка В.А Нелинейные кинетические явления при поляризации твёрдых диэлектриков // Вестник Московского государственного областного университета. Серия: Физика-математика. 2018. № 2. С. 61–75.
DOI: 10.18384/2310-7251-2018-2-61-75.

FOR CITATION

Kalytka V.A. Nonlinear kinetic phenomena under polarization in solid dielectrics. In: *Bulletin of Moscow Region State University. Series: Physics and Mathematics.* 2018. no. 2. pp. 61–75.
DOI: 10.18384/2310-7251-2018-2-61-75.