

ФЛИККЕР-ШУМОВАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ: ИЗВЛЕЧЕНИЕ ИНФОРМАЦИИ ИЗ ХАОТИЧЕСКИХ СИГНАЛОВ, ПРОДУЦИРУЕМЫХ СЛОЖНЫМИ СИСТЕМАМИ

С.Ф.ТИМАШЕВ, д-р физ.-мат. наук, профессор

Научно-исследовательский физико-химический институт им. Л.Я.Карпова (Москва)

Ю.С.ПОЛЯКОВ, канд. физ.-мат. наук

USPolyResearch, Ashland (USA)

Хаотические серии динамических переменных разной сущности, получаемые при исследовании разнообразных природных процессов и структур и представляемые обычно в виде временных рядов или пространственных рядов и карт, достаточно часто содержат требуемую информацию о состоянии исследуемых систем, специфике их эволюции, особенностях их структурной организации. Но как извлечь эту нужную информацию и как её представить, *a priori* осознавая, что общее количество информации в фиксируемых сериях фактически бесконечно, поскольку бесконечно число степеней свободы анализируемых природных систем? Существующие методы нелинейного анализа [1], основанные на теории детерминированного хаоса [2] с представлением динамики открытых диссипативных процессов в виде конечной системы обыкновенных нелинейных дифференциальных уравнений и ориентированные на получение информации о фрактальной размерности странного аттрактора, коэффициентах Ляпунова, энтропии Колмогорова и т.д., оказались неэффективными при анализе хаотических серий, получаемых из эксперимента.

Рассмотрим основные принципы фликкер-шумовой спектроскопии (*flicker-noise spectroscopy*) – ФШС [3–10], общего феноменологического подхода к решению формулируемых проблем. В рамках ФШС информация, содержащаяся в хаотических сериях динамических переменных, может быть в наиболее общей феноменологической форме «различимым» образом классифицирована и извлечена из произвольных хаотических серий. Число «требуемых» параметров или характерных зависимостей, которые соответственно могут быть определены как «паспортные данные» или «паттерны», в каждом конкретном случае определяется поставленной задачей. При этом в одном и том же анализируемом объекте возможно выявлять разные качества и различать особенности разных уровней организации.

Исходные положения фликкер-шумовой спектроскопии

1. Вводится представление об иерархии пространственно-временных уровней организации рассматриваемых сложных открытых динамических диссипативных систем, хаотическая временная динамика которых представляется измеряемой динамической переменной $V(t)$, где t – время, на временном интервале T .

2. Носителями информации, содержащейся в измеряемых хаотических сериях, в том числе временных рядах $V(t)$, являются совокупности различных нерегулярностей – всплесков, скачков, разрывов производных разного порядка, реализующихся на каждом из пространственно-временных уровней иерархии системы (полагаем $\langle V(t) \rangle = 0$). «Различимость» вводимых нерегулярностей проявляется в том, что параметры, характеризующие совокупные свойства каждого из их типов, различимо извлекаются при анализе «спектров мощности» $S(f)$ (f – частота):

$$S(f) = 2 \int_{-T/2}^{T/2} \langle V(t)V(t+t_1) \rangle \cos(2\pi f t_1) dt_1;$$

$$\langle Q(t, t_1) \rangle = \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} Q(t, t_1) dt$$

и разностных моментов $\Phi^{(p)}(\tau)$ порядка p ($p = 1, 2, 3, \dots$):

$$\Phi^{(p)}(\tau) = \langle |V(t) - V(t+\tau)|^p \rangle. \quad (1)$$

При этом зависимости $\Phi^{(p)}(\tau)$ формируются исключительно скачками динамической переменной на разных пространственно-временных уровнях иерархии системы, а в формирование $S(f)$ вносят вклад всплески и скачки.

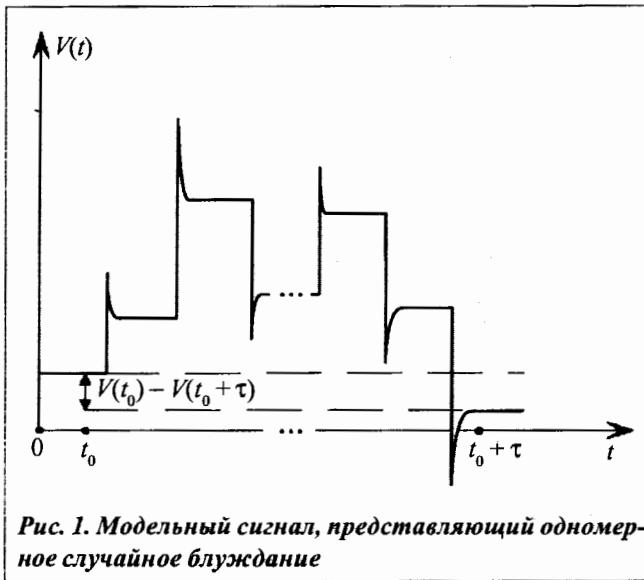


Рис. 1. Модельный сигнал, представляющий одномерное случайное блуждание

Для иллюстрации данного положения удобно рассмотреть процесс одномерного случайного блуждания (random walk) с малой кинематической вязкостью ν , схематично представленный на рис. 1. Малое значение ν означает, что при переходе из одного положения V_i в следующее V_{i+1} отстоящее на величину $|V_{i+1} - V_i|$, система по инерции «пролетает» несколько большее расстояние, но затем релаксирует (полагаем, что время такой релаксации мало по сравнению с длительностью пребывания системы в каждом из положений «блуждания»). Очевидно, что рассчитываемые для такого процесса зависимости $\Phi^{(n)}(\tau)$ при большом числе смещений не будут зависеть от величин «инерционных» перелётов системы, а будут лишь определяться алгебраической суммой разностей происшедших смещений. В то же время зависимости $S(f)$, характеризующие общую «энергетику» процесса, будут определяться обоими факторами.

3. «Паспортные данные», извлекаемые из анализа зависимостей $S(f)$ и $\Phi^{(n)}(\tau)$, построенных на основе временных рядов $V(t)$, имеют смысл *времен корреляции* и *параметров, характеризующих потерю «памяти»* (корреляционных связей) на этих временах корреляции, для нерегулярностей типа *всплесков* и *скачков*. Соответствующие параметры для нерегулярностей типа *разрывов производных* извлекаются из спектров мощностей и разностных моментов, построенных на основе временных рядов $\Delta^m V(t_k) / \Delta t^m$ ($m \geq 1$). [Здесь $\Delta^m V(t_k) = \Delta^{m-1} V(t_k) - \Delta^{m-1} V(t_{k-1})$; $\Delta t = (t_k - t_{k-1})$ – интервал дискретизации значений динамической переменной, фиксируемых в дискретные моменты времени t_k].

4. Для *стационарных процессов* в открытых диссипативных системах, когда автокоррелятор $\psi(\tau) = \langle V(t)V(t+\tau) \rangle$ зависит только от разности аргументов τ , реализуется *самоподобие* (многопараметрическое – в отличие от этого образа в теории фракталов и ренормгруппы): *каждый из вводимых параметров имеет одно и то же значение для каждого из совокупности пространственно-временных уровней иерархии системы.*

Основные соотношения для стационарных процессов

Запишем интерполяционное выражение для хаотических компонент в случае стационарного процесса [4]. Полагается, что параметры, характеризующие эволюционную динамику на каждом её пространственно-временном уровне, одинаковы. Рассмотрим простейший случай, когда вводится лишь один характерный масштаб в последовательности скачков и всплесков. Тогда:

$$\Phi_c^{(2)}(\tau) \approx 2\sigma^2 \cdot [1 - \Gamma^{-1}(H_1) \cdot \Gamma(H_1, \tau/T_1)]^2;$$

$$\Gamma(s, x) = \int_x^\infty \exp(-t) \cdot t^{s-1} dt, \quad \Gamma(s) = \Gamma(s, 0),$$

где $\Gamma(s)$ и $\Gamma(s, x)$ – соответственно гамма-функция и неполная гамма-функция ($x \geq 0$ и $s > 0$); σ – дисперсия измеряемой динамической переменной с размерностью $[V]$; H_1 – константа Херста, характеризующая скорость, с которой динамическая переменная теряет «память» о своей величине на временных интервалах, меньших времени корреляции T_1 . В этом случае T_1 может интерпретироваться как корреляционное время для скачков в хаотически изменяющейся переменной $V(t)$.

В частных случаях имеем:

$$\Phi_c^{(2)}(\tau) = 2\Gamma^{-2}(1 + H_1) \cdot \sigma^2 \left(\frac{\tau}{T_1} \right)^{2H_1}, \quad \text{если } \frac{\tau}{T_1} \ll 1;$$

$$\begin{aligned} & \Phi_c^{(2)}(\tau) = \\ & = 2\sigma^2 \left[1 - \Gamma^{-1}(H_1) \cdot \left(\frac{\tau}{T_1} \right)^{H_1-1} \exp\left(-\frac{\tau}{T_1}\right) \right]^2, \quad \text{если } \frac{\tau}{T_1} \gg 1. \end{aligned}$$

Интерполяционная функция для составляющей спектра мощности $S_{cS}(f)$, формируемой всплесками, записывается как

$$S_{cS}(f) \approx \frac{S_{cS}(0)}{1 + (2\pi f T_0)^{n_0}}. \quad (2)$$

Здесь $S_{cS}(0)$ – параметр, характеризующий низкочастотный предел $S_{cS}(f)$; n_0 характеризует скорость потери корреляционных связей в последовательности всплесков на временных интервалах T_0 .

Интерполяционная зависимость для составляющей спектра мощности $S_{cR}(f)$, формируемой скачками, записывается как

$$S_{cR}(f) \approx \frac{S_{cR}(0)}{1 + (2\pi f T_1)^{2H_1+1}}, \quad (3)$$

$$\text{где } S_{CR}(0) = 4\sigma^2 T_1 H_1 \left\{ 1 - \frac{1}{2H_1 \Gamma^2(H_1)} \int_0^\infty \Gamma^2(H_1, \xi) d\xi \right\}.$$

$$S_r(f) = \int_0^\infty \cos(2\pi ft) [\Phi_r^{(2)}(\infty) - \Phi_r^{(2)}(\tau)] d\tau.$$

Хотя интерполяционные соотношения (2) и (3), характеризующие вклад в спектр мощности «нерегулярностей-всплесков» и «нерегулярностей-скачков» соответственно, имеют одинаковый функциональный вид, параметры в этих соотношениях различны, так что $S_{CS}(0) \neq S_{CR}(0)$, $T_1 \neq T_0$ и $2H_1 + 1 \neq n_0$. Это означает, что эти параметры, определяемые из спектров мощности и структурных функций второго порядка при анализе экспериментальных временных серий $V(t)$, несут различную информацию. В частности, характерные времена T_1 и T_0 могут значительно различаться, выделяя разные частотные диапазоны эффективных вкладов в спектр мощности указанных нерегулярностей. Можно ожидать, что более регулярный характер «нерегулярностей-скачков» по сравнению с изменением «нерегулярностей-всплесков» обусловит проявление вклада «нерегулярностей-скачков» в более низкочастотной области по сравнению с вкладом «нерегулярностей-всплесков». Поэтому высокочастотная часть анализируемых спектров мощности с характерной степенной фликкер-шумовой зависимостью $S_c(f) \sim 1/f^n$ будет обуславливаться преимущественно вкладом «нерегулярностей-всплесков».

Как отмечалось выше, в хаотической динамике сложных систем наряду с неспецифической корреляционной динамикой в последовательностях информационно значащих нерегулярностей часто проявляются специфические для каждой из рассматриваемых систем резонансные зависимости. В этом случае проблема состоит в извлечении из измеряемого сигнала $V(t)$ всей возможной совокупности параметров, относящихся как к хаотической динамике, так и к специфическим резонансам.

Среди всех возможных резонансов в процессе будем выделять вклад достаточно низкочастотных резонансных составляющих, плавно изменяющихся на фоне высокочастотных хаотических составляющих. Будем представлять сигнал $V(t)$ в виде линейной суперпозиции высокочастотной хаотической компоненты $V_c(t)$ и медленно изменяющейся резонансной компоненты $V_r(t)$:

$$V(t) = V_c(t) + V_r(t).$$

В этом случае функции автокоррелятора и спектра мощности можно представить в виде [7]:

$$\psi(\tau) = \psi_r(\tau) + \psi_c(\tau); \quad S(f) = S_c(f) + S_r(f).$$

При этом полагаем также, что резонансные составляющие исследуемых сигналов стационарны (резонансная часть автокоррелятора $\psi_r(\tau)$ зависит только от разности аргументов τ). Тогда функции $S_r(f)$ и $\Phi_r^{(2)}(\tau)$, соответствующие $V_r(t)$, оказываются связанными [3, 4]:

Если мы рассматриваем достаточно большие временные интервалы ($T \gg \max\{T_0, T_1\}$), то для определения резонансной составляющей автокоррелятора $\psi_r(\tau)$ по резонансному вкладу $S_r(f)$ может быть использовано обратное косинус-преобразование при формальном пределе $T \rightarrow \infty$:

$$\psi_r(\tau) = 2 \int_0^\infty S_r(f) \cos(2\pi f\tau) df.$$

Только в этом случае удаётся последовательно разрешить проблему разделения вкладов резонансных и хаотических составляющих с полной параметризацией исследуемых сигналов. Как показывает опыт, такое приближение оказывается вполне оправданным при решении конкретных проблем параметризации сложных сигналов разной сущности. При этом число резонансных составляющих, реально учитываемых при анализе динамики сложных систем, может быть велико, реально – несколько сотен или тысячи.

Аналогичным образом проводится разбиение на резонансную $\Phi_r^{(2)}(\tau)$ и хаотическую $\Phi_c^{(2)}(\tau)$ составляющие разностных моментов 2-го порядка:

$$\Phi^{(2)}(\tau) = \Phi_c^{(2)}(\tau) + \Phi_r^{(2)}(\tau).$$

Резонансная составляющая $\Phi_r^{(2)}(\tau)$ в этом случае определяется как

$$\Phi_r^{(2)}(\tau) = 2[\psi_r(0) - \psi_r(\tau)].$$

Динамика нестационарных процессов: прекурсоры катастрофических изменений состояния системы

Для выявления эффектов нестационарности в анализируемых процессах изучается динамика изменений функций $S(f)$ и $\Phi^{(n)}(\tau)$ при последовательном смещении пробного интервала $[t_k, t_k + T]$, где $k = 0, 1, 2, 3, \dots$ и $t_k = k\Delta T$, по всей длине T_{tot} имеющегося экспериментального ряда данных ($t_k + T < T_{\text{tot}}$). Временные интервалы T и ΔT должны выбираться исходя из физического смысла рассматриваемой задачи с учётом предполагаемого характерного времени процесса, наиболее важного для эволюции исследуемой системы. Если в системе происходят какие-то второстепенные процессы с характерными временами τ_j , слабо влияющие на основной нестационарный процесс перестройки структуры, то при выборе интервала T должно соблюдаться условие: $\tau_j \ll T$.

Феномен появления «предвестника» естественно связать с наиболее резкими изменениями зависимостей $S(f)$ и $\Phi^{(n)}(\tau)$ при приближении верхней границы временного интервала усреднения t_k к моменту t_c катастрофического

события, когда в системе происходит перестройка на всех возможных пространственных масштабах. Понятно, что говорить о предвестнике можно только в том случае, если время его проявления t_k отстоит от момента t_c не менее чем на интервал ΔT , т.е. $\Delta T_{sn} = t_c - t_k \geq \Delta T$, при выполнении неравенства $\Delta T_{sn} \ll T_{tot}$.

При анализе хаотических серий, получаемых в ходе экспериментальных измерений, часто возникают проблемы сглаживания исходных реализаций. Существуют различные способы фильтрации оцифрованного сигнала с выделением низкочастотной составляющей: использование сглаживающих полиномов, вейвлетов и т.д. При соответствующем разбиении исходного сигнала $V(t)$ на низкочастотную $V_R(t)$ и высокочастотную $V_F(t)$ части, предложенном в работе [6], выделение высокочастотной части основано на релаксационной процедуре, построенной по аналогии с решением уравнения диффузии, представленного в виде разностного уравнения. Итерация этого уравнения с вычислением новых значений сигнала на каждом релаксационном шаге через значения на предыдущем шаге позволяет получить низкочастотную составляющую V_R . Вычитая её из исходного сигнала, получим высокочастотную составляющую V_F . Фактически процедура сглаживания соответствует последовательному уменьшению градиентов локальных значений переменных-«концентраций» с взаимным сближением точек в каждой из рассматриваемых троек. Разбиение исходного сигнала $V(t)$ на две составляющие $V_R(t)$ и $V_F(t)$ даёт возможность в последующем рассчитывать функциональные зависимости $S(f)$ и $\Phi^{(j)}(\tau)$, введённые выше, для каждой из трёх функций $V_j(t)$ ($J=R, F$ или G), где индекс G относится к случаям, когда при расчётах используется исходный сигнал $V(t)$.

В частности, при использовании высокочастотной и низкочастотной компонент $V_j(t)$ рассчитываются прекурсоры катастрофических событий на основе разностных моментов $\Phi_j^{(j)}(\tau)$, рассчитанных по формуле (1). При этом учтём, что зависимости $\Phi_j^{(j)}(\tau)$ надёжно рассчитываются лишь для области изменения $[0, \alpha T]$ аргумента τ менее половины интервала усреднения T , так что $\alpha < 0,5$. В качестве предвестников катастрофических событий будем рассматривать всплески значений индикаторов нестационарности, определяемых безразмерными соотношениями, составляемыми на основании разностных моментов $\Phi^{(2)}(\tau)$ [4, 6, 8]:

$$C_J(t_{k+1}) = 2 \cdot \frac{Q_{k+1}^J - Q_k^J}{Q_{k+1}^J + Q_k^J} \cdot \frac{\Delta T}{T}; Q_k^J = \int_0^{\alpha T} [\Phi_J^{(2)}(\tau)]_k d\tau, \quad (4)$$

где нижний индекс J указывает, с использованием каких функций $V_j(t)$ ($J=R, F$ или G) рассчитываются зависимости $\Phi_j^{(2)}(\tau)$. Нижние и верхние обозначения у квадратных скобок в выражениях (4) показывают границы временных интервалов, в которых рассчитываются спектры мощности, соответствующие компоненте $V_j(t)$.

Введённые соотношения характеризуют меру нестационарности анализируемого процесса при перемещении

интервала усреднения T по оси времени на величину ΔT , в частности при приближении верхней границы временного интервала усреднения t_k к моменту t_c катастрофического события.

Корреляционные взаимосвязи в динамике распределённых систем

Новые возможности ФШС открываются при использовании этого подхода для анализа потоков (массовых, электрических, магнитных) в распределённых системах, размеры которых превосходят пространственные масштабы областей заметного изменения анализируемых динамических переменных и эволюция фрагментов (подсистем) которых в сильной мере оказывается «переплетённой» из-за реализующихся сложных нелинейных взаимосвязей между фрагментами. Информация о динамике реализующихся корреляционных взаимосвязей между динамическими переменными $V_i(t)$, измеряемыми в разных точках i , может быть извлечена из анализа временных зависимостей соответствующих корреляторов [5].

Из всего многообразия вводимых корреляционных соотношений [5] здесь рассмотрим лишь простейший тип двухточечных корреляторов, характеризующих взаимосвязи между динамическими переменными $V_i(t)$ и $V_j(t)$:

$$q_{ij}(\tau; \theta_{ij}) = \left\langle \left[\frac{V_i(t) - V_i(t+\tau)}{\sqrt{2\sigma_i}} \right] \left[\frac{V_j(t+\theta_{ij}) - V_j(t+\theta_{ij}+\tau)}{\sqrt{2\sigma_j}} \right] \right\rangle, \quad (5)$$

где τ – время задержки; θ_{ij} – параметр смещения во времени. Знак и величина этого параметра характеризуют не только причинно-следственную связь (направленность потока) сигналов $V_i(t)$ и $V_j(t)$, но и характерную скорость передачи информации между точками i и j при заданном расстоянии между ними. При $\theta_{ij} > 0$ можно говорить о распространении потока в исследуемой системе от точки i к точке j , при $\theta_{ij} < 0$ – от точки j к точке i . Заметим, что в качестве дисперсий σ_i и σ_j динамических переменных $V_i(t)$ и $V_j(t)$ можно рассматривать либо стандартные среднеквадратичные отклонения, либо величину приведённой дисперсии, определяемой согласно

$$\sigma_i(\tau) = \left\{ \left[V_i(t) - V_i(t+\tau) \right]^2 \right\}^{1/2}. \quad (6)$$

Некоторые приложения

Проведённые к настоящему времени исследования показывают, что ФШС-метод может быть использован для решения трёх типов проблем.

✓ *Выявление параметров, характеризующих динамику или особенности структурной организации открытых сложных систем.*

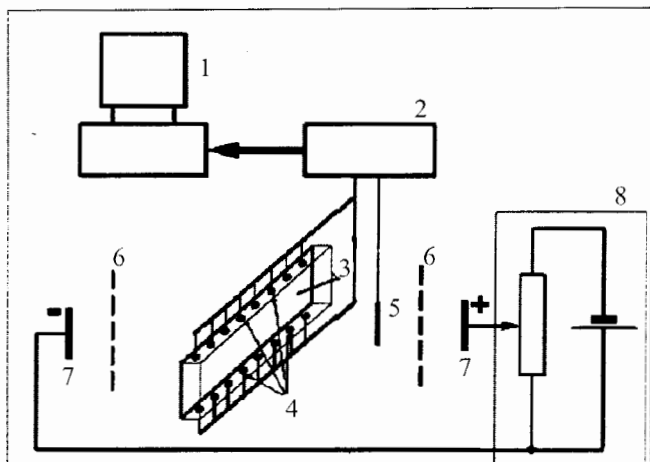


Рис. 2. Схема установки для многоточечных измерений флуктуаций потенциала в электромембранной системе: 1 – компьютер; 2 – многоканальный аналого-цифровой преобразователь; 3 – исследуемая мембрана; 4 – измерительные электроды; 5 – Ag/AgCl-электрод сравнения; 6 – ультрафильтры; 7 – поляризующие электроды; 8 – источник постоянного тока

Рассмотрим для примера флуктуационную динамику электрического потенциала при запредельной плотности тока в электромембранной системе [6, 9]. Для регистрации электрических шумов применяли четырёхкамерную стеклянную ячейку без принудительного перемешивания раствора. Схема измерительной установки приведена на рис. 2. Каждая из камер представляла собой стеклянный цилиндр длиной 25 мм с внутренним диаметром 15 мм. Камеры с измерительными электродами отделялись от анодной и катодной камер ультрафильтрационными мембранами во избежание загрязнения исследуемой системы продуктами электродных реакций. Поляризующие цилиндрические электроды из графита располагались во внешних камерах. Плоская сульфокатионитовая мембрана на основе ароматического полиамида (толщина мембраны составляла 55 мкм) располагалась вертикально и разделяла две внутренние камеры электролизной ячейки.

Для проведения измерений шумов электрического потенциала вблизи поверхности мембраны [9] была изготовлена снабжённая микроэлектродами оправка, ограничивающая исследуемую поверхность мембраны прямоугольником $10 \times 1 \text{ мм}^2$. Измерительные электроды из медной проволоки диаметром 100 мкм были жёстко закреплены на длинной стороне прямоугольной оправки на расстоянии $\sim 200 \text{ мкм}$ от поверхности мембраны. Рабочими поверхностями электродов служили посеребрённые торцы проволоки, на которых формировался слой AgCl. Расстояния между соседними электродами составляли от 0,5 до 4 мм. Использовались два набора измерительных электродов – по 8 на каждой из длинных сторон прямоугольной оправки. Электродом сравнения служил Ag/AgCl-электрод, расположенный в измерительной камере на расстоянии 15 мм от мембраны. Электрод сравнения и 16 измери-

тельных электродов находились по одну сторону исследуемой мембраны. В качестве электролита использовался раствор NaCl, все измерения были выполнены при температуре $22 \text{ }^\circ\text{C}$.

Исследования шумов проводили в гальваностатическом режиме. При этом поляризующие электроды присоединялись к специально изготовленному стабилизированному источнику постоянного тока. Разности потенциалов между электродом сравнения и 16 измерительными электродами регистрировались синхронно с помощью 12-битного многоканального АЦП L-305 L-Card с входным сопротивлением 1 МОм. Флуктуации измеряемой разности потенциалов наблюдались в том случае, когда измерительные электроды находились со стороны мембраны, обращённой к положительному поляризующему электроду. В том случае, когда измерительные электроды размещались со стороны мембраны, обращённой к катодному токозадающему электроду, флуктуации падения потенциала не обнаруживались. Для примера на рис. 3 представлена хаотическая динамика сигнала $V(t)$, фиксируемая смежными 2-м и 3-м электродами (в верхнем ряду слева направо на рис. 2) соответственно. Приводимые временные ряды были

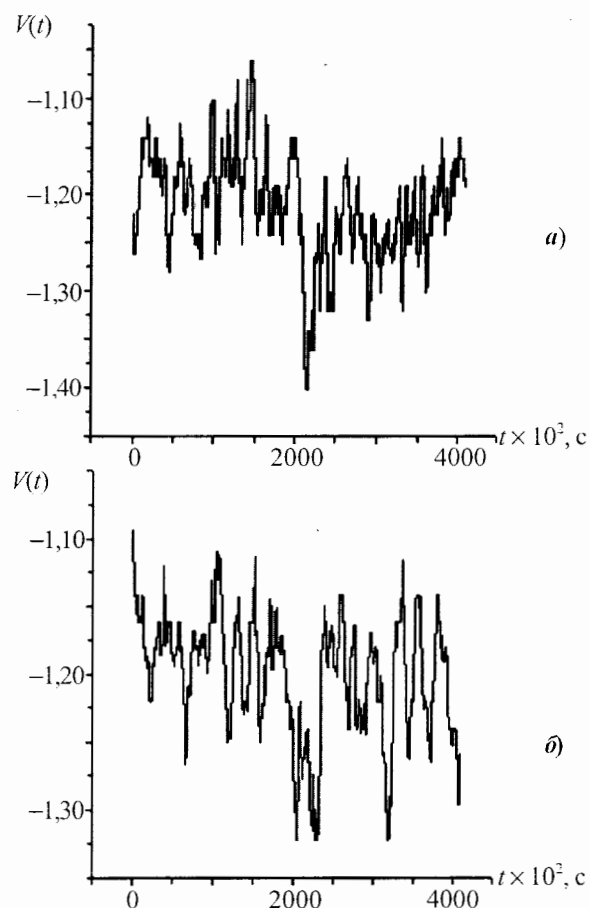


Рис. 3. Фрагменты временных рядов $V_2(t)$ (а) и $V_3(t)$ (б), измеренных в 50-мм водном растворе NaCl при плотности тока $j = 25 \text{ мА/см}^2$ [6, 9]. Частота дискретизации $f_0 = 100 \text{ Гц}$

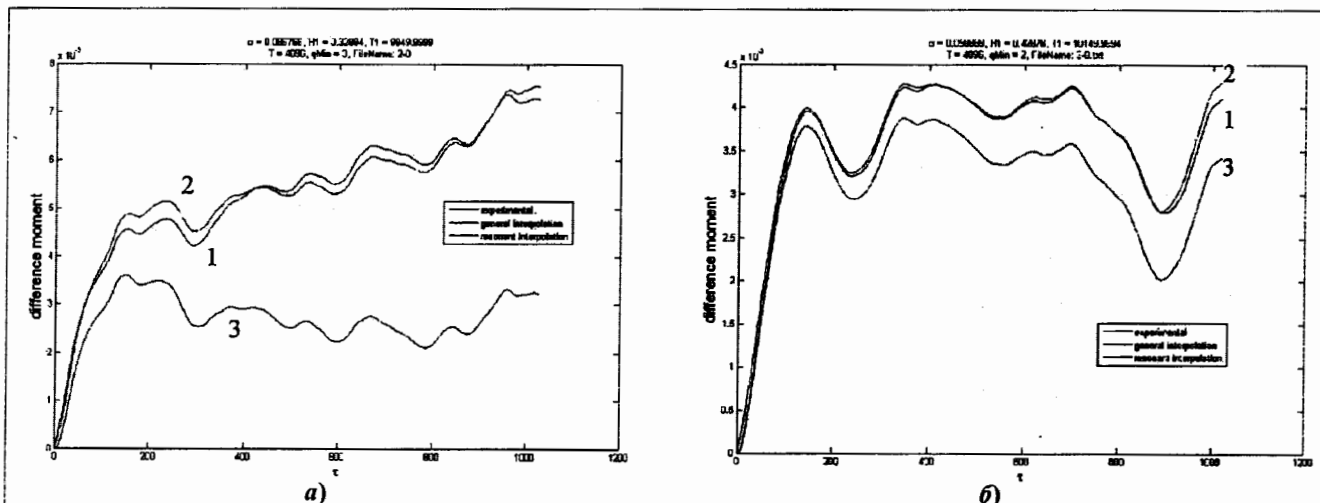


Рис. 4. Структурные функции $\Phi^{(2)}(\tau)$ сигналов, представленных на рис. 3, а (а) и 3, б (б): 1 – экспериментальная зависимость; 2 – расчётная зависимость, определяемая резонансными составляющими и вкладом «нерегулярностей-скачков» при $\sigma = 0,09$ г.и.; $H_1 = 0,329$; $T_1 = 9950 f_0^{-1}$ (а) и $\sigma = 0,05$ г.и.; $H_1 = 0,427$; $T_1 = 10150 f_0^{-1}$; 3 – вклад в зависимость $\Phi^{(2)}(\tau)$ резонансных составляющих. Плотность тока $j = 25$ мА/см². Частота дискретизации $f_0 = 100$ Гц

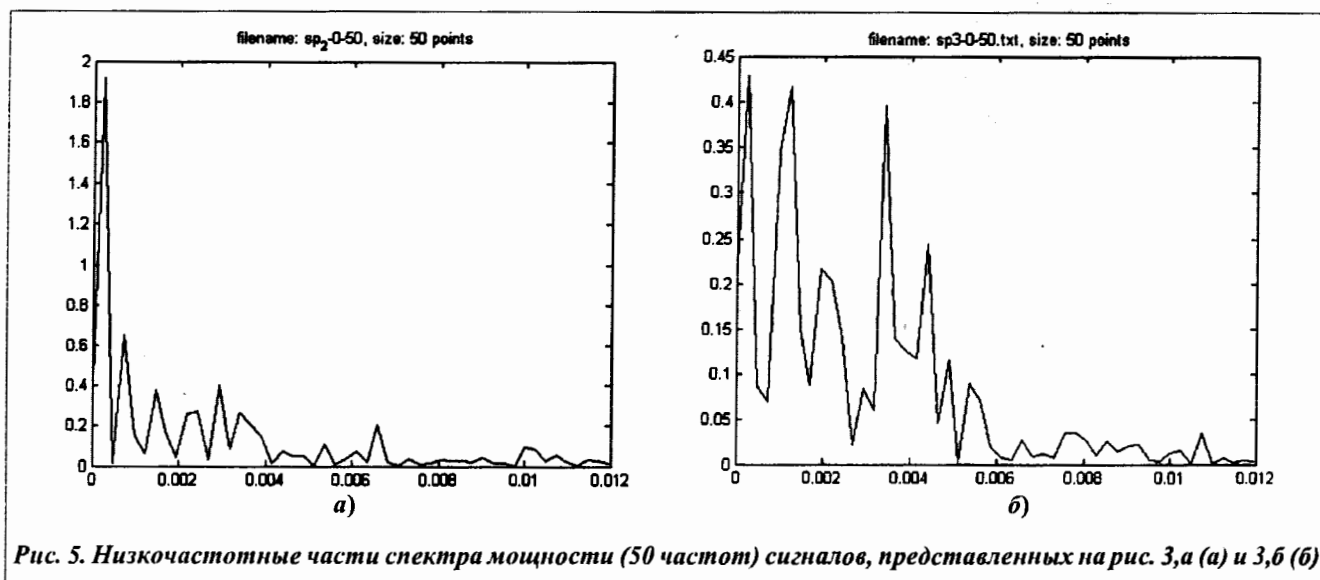


Рис. 5. Низкочастотные части спектра мощности (50 частот) сигналов, представленных на рис. 3, а (а) и 3, б (б)

получены из непосредственно измеряемых значений мембранных потенциалов путём программного вычитания постоянной составляющей с удалением линейного тренда, так что среднее значение $\langle V_i(t) \rangle = 0$. Частота дискретизации анализируемых рядов составляла 100 Гц при общем числе фиксированных значений потенциала для каждого ряда, равном 4096.

Представленные на рис. 4 и 5 зависимости $\Phi^{(2)}(\tau)$ и $S(f)$, рассчитанные для представленных на рис. 3 рядов $V(t)$, несут информацию о флуктуационной динамике локальных гидродинамических потоков, которые развиваются в прилегающих к катионообменной мембране слоях электролита со стороны камеры обессоливания. Именно развитие гидродинамических неустойчивостей обуславливает необходимый подвод ионов к мембране из объёма камеры и реализацию запредельных режимов в электромембранной системе, когда плотность тока может превышать предельное значение (при наличии лишь диффузионного подвода

ионов) этой величины на порядки. Как следует из приведённых зависимостей $\Phi^{(2)}(\tau)$, характерные времена существования локальных потоков определённой направленности в примембранной области электролита могут составлять 1–10 и более секунд. При этом более редкие, но более интенсивные локальные потоки «живут» дольше. Зависимости $S(f)$ дают информацию о наборе частот (диапазон $5 \cdot 10^{-3} - 10^{-2}$ Гц) реализующихся гидродинамических пульсаций. Эти частоты проявляются в зависимостях $\Phi^{(2)}(\tau)$, демонстрирующих индивидуальность (различимость) измеряемых сигналов, которые, как следует из рис. 3, визуально мало отличаются друг от друга. В качестве дополнительных паспортных паттернов могут рассматриваться и зависимости квазикумулянтов $\mu^{(3)}(\tau)$ и $\mu^{(4)}(\tau)$ от параметра задержки τ [6].

В работе [10] были продемонстрированы возможности ФШС-методологии в извлечении информации о кинетике значительно более сложного электрохимического про-

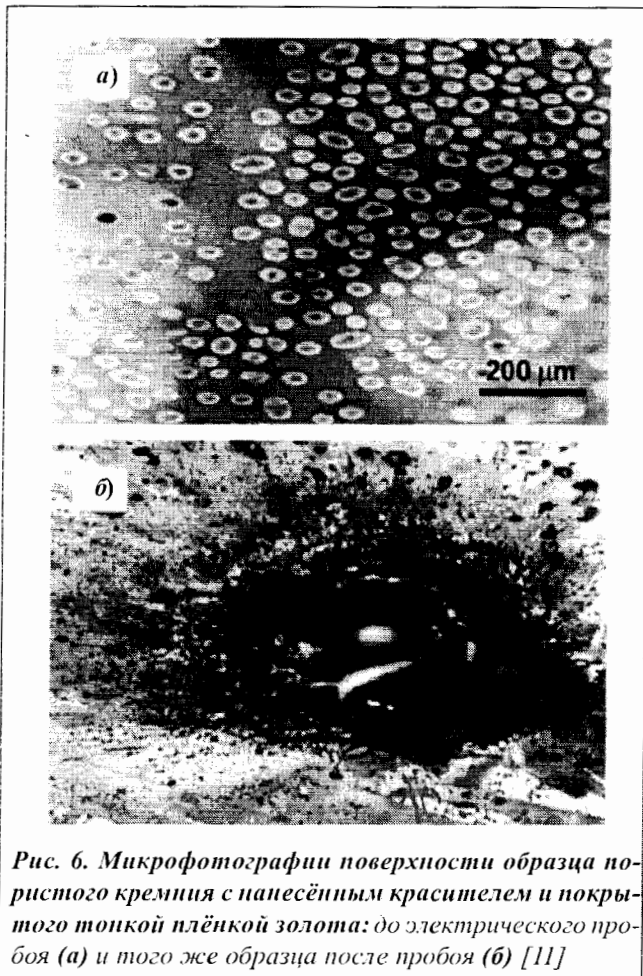


Рис. 6. Микрофотографии поверхности образца пористого кремния с нанесённым красителем и покрытого тонкой плёнкой золота: до электрического пробоя (а) и того же образца после пробоя (б) [11]

цесса формирования пористого кремния в электролитах, содержащих HF. На основании анализа динамики флуктуаций электрического напряжения были развиты представления о механизме этого процесса на микроскопическом уровне и генезисе синхронного поведения совокупности локальных состояний корродирующей поверхности кремния с интегральным осциллирующим откликом (детали анализа см. в работе [10]).

✓ *Выявление предвестников наиболее резких изменений в состоянии открытых диссипативных систем разной сущности на основе априорной информации о динамике этих систем.*

В качестве примера наступления катастрофического события рассмотрим электрический пробой в пористом кремнии при фиксированном анодном напряжении на образце в условиях повышающейся во времени (по линейному закону) температуры от 20 до 250 °C вплоть до достижения электрического пробоя в полупроводниковых системах [11]. Можно полагать, что пробоем предшествуют необратимые перестройки структуры материала исследуемой системы, и задача может состоять в выявлении предвестников пробоя, сигнализирующих о происходящих опасных структурных перестройках. На поверхность исследуемого образца пористого кремния наносился краситель для визуализации возможных структурных изменений макроскопического характера на поверхности вследствие электрического пробоя, а затем тон-

кие Au-пятна (~ 2 мм²), посредством которых осуществлялся электрический контакт с соответствующим электродом. Микрофотографии поверхности образца до электрического пробоя и того же образца после пробоя представлены на рис. 6. На рис. 7,а представлена одна из полученных зависимостей

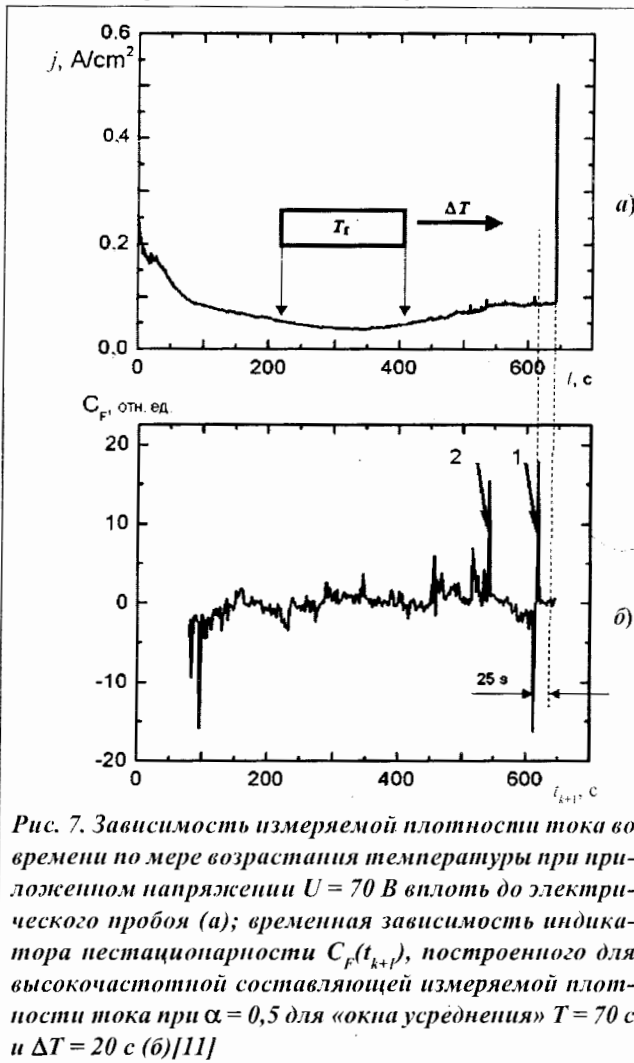


Рис. 7. Зависимость измеряемой плотности тока во времени по мере возрастания температуры при приложении напряжения $U = 70$ В вплоть до электрического пробоя (а); временная зависимость индикатора нестационарности $C_F(t_{k+1})$, построенного для высокочастотной составляющей измеряемой плотности тока при $\alpha = 0,5$ для «окна усреднения» $T = 70$ с и $\Delta T = 20$ с (б) [11]

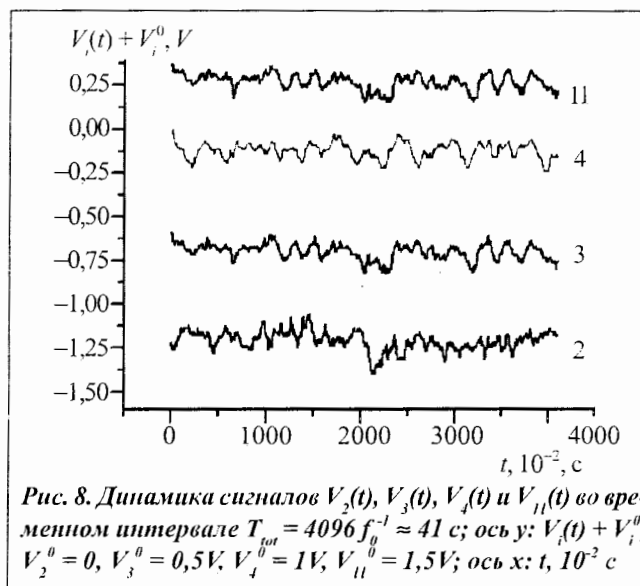


Рис. 8. Динамика сигналов $V_2(t)$, $V_3(t)$, $V_4(t)$ и $V_{11}(t)$ во временном интервале $T_{int} = 4096 f_0^{-1} \approx 41$ с; ось y: $V_i(t) + V_i^0$, $V_2^0 = 0$, $V_3^0 = 0,5$ В, $V_4^0 = 1$ В, $V_{11}^0 = 1,5$ В; ось x: t , 10^{-2} с

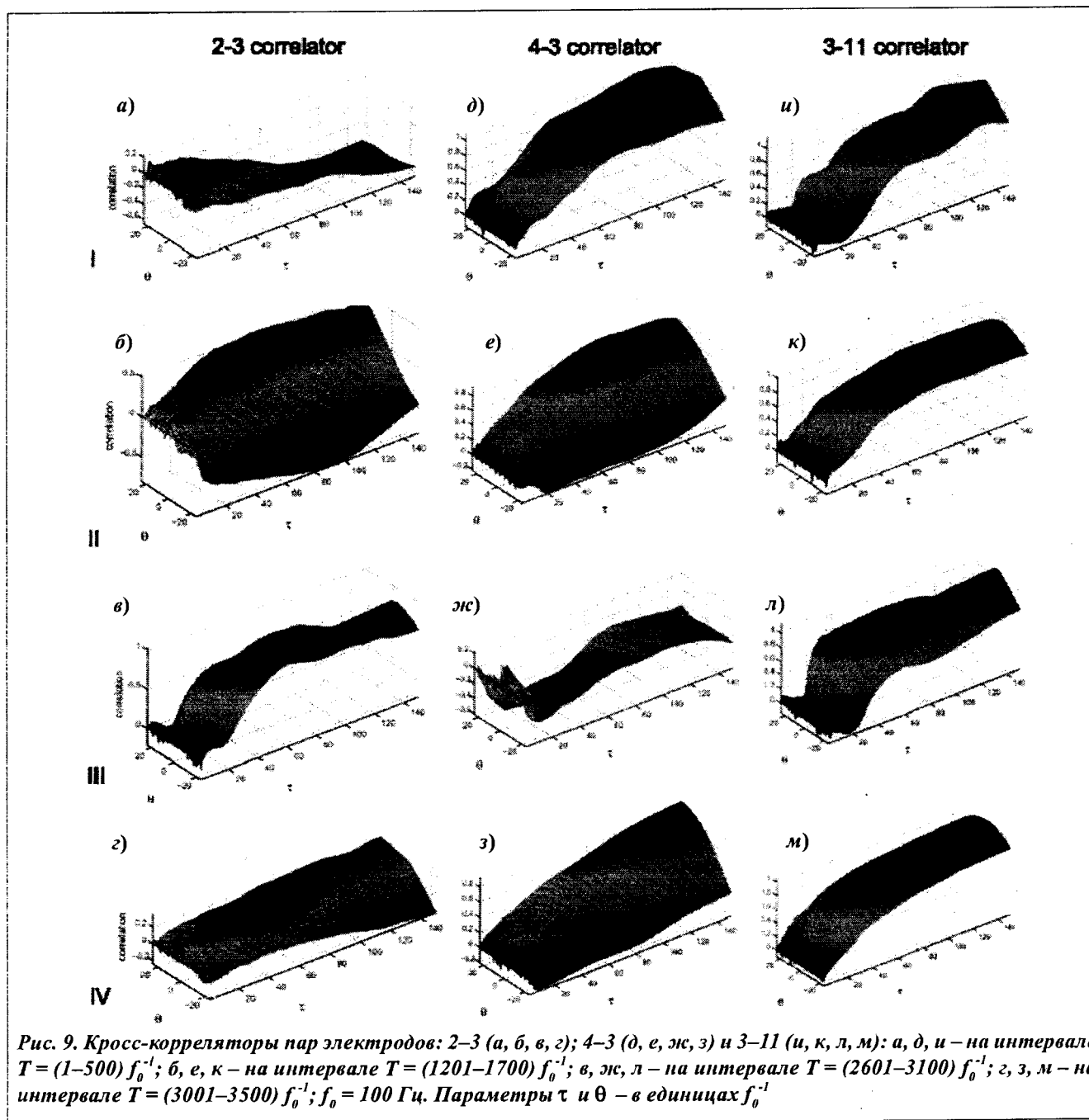
измеряемой плотности тока от времени по мере возрастания температуры при приложенном напряжении $U = 70$ В, а на рис. 7,б приведена временная зависимость индикатора нестационарности $C_F(t_{k+1})$, построенного на основании выражений (4) для высокочастотной составляющей измеряемой плотности тока при $\alpha = 0,5$ для «окна усреднения» $T = 70$ с и $\Delta T = 20$ с. Электрическому пробое, как следует из зависимости на рис. 7,б, предшествует за 20–25 с пиковое значение критерия нестационарности (помечено стрелкой 1), отражающее, по-видимому, происходящие накануне электрического пробоя структурные изменения в исследуемом образце пористого кремния. Помимо этой сингулярности на зависимости $C_F(t_{k+1})$, предшествующей пробое, присутствует ещё один значительный пик (отмечен стрелкой 2 на рис. 7,б), отражающий более ранние перестройки структу-

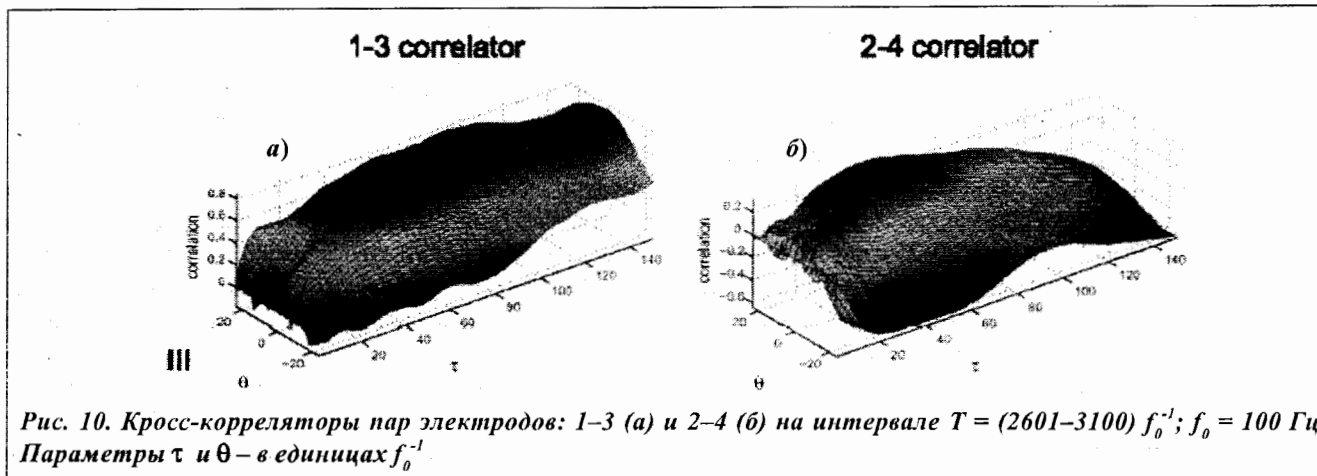
ры пористого кремния. В рассмотренном примере этот временной интервал составлял около 200 с.

Развитая методология была опробована при поиске предвестников наиболее резких изменений состояния эволюционирующих систем – при электрическом пробое в полупроводниковых системах, при поиске предвестников наиболее резких изменений состояния геофизических систем, в том числе катастрофических землетрясений [8].

✓ *Установление динамики перераспределения возбуждений в распределённых системах на основе анализа динамических корреляций в хаотических сигналах, измеряемых одновременно в пространственно-разнесённых точках.*

Установление динамики внутренних потоков в распределённых системах является достаточно общей проблемой.





Проиллюстрируем возможности ФШС-методологии для решения такого типа задач на примере анализа флуктуаций электрического потенциала, измеряемого в электро- мембранной системе [6, 9] при запредельной плотности тока в примембранной области электролита одновременно 16 измерительными электродами (см. рис. 2). При этом задача определения полной картины перераспределения локальных гидродинамических потоков в такой многоэлектродной системе чрезвычайно сложна.

Ограничимся рассмотрением лишь простейших случаев: приведём результаты расчёта динамических вариаций нескольких двухточечных корреляторов $q_{ij}(\tau; \theta_{ij})$ – кросс-корреляторов, формируемых исключительно «нерегулярностями-скачками» измеряемых динамических переменных $V_i(t)$ и $V_j(t)$ и рассчитываемых согласно выражению (5). Микроэлектроды, изображённые на рис. 2, нумеруются по порядку (1, 2, 3 и т.д.) вначале в верхнем ряду слева направо, а затем, начиная с 9-го электрода, таким же образом (слева направо) в нижнем ряду. При такой нумерации 9-й электрод расположен ниже 1-го, 10-й – ниже 2-го, 11-й – ниже 3-го, 12-й – ниже 4-го и т.д. В соответствии с этой нумерацией кросс-корреляторы $q_{ij}(\tau; \theta_{ij})$, рассчитываемые для временных рядов, измеряемых на электродах i и j , будем определять так же, как кросс-корреляторы $i-j$. Приведём результаты анализа динамики кросс-корреляторов между сигналами с электродов 2, 3, 4 и 11. Для визуального сопоставления динамика изменения сигналов $V_i(t)$ на этих электродах представлена на рис. 8.

На рис. 9 приведены двухпараметрические зависимости (5) для кросс-корреляторов 2–3, 4–3 и 3–11, а на рис. 10 – для кросс-корреляторов 1–3 и 2–4 от параметров τ и θ_{ij} при выборе параметра σ_i в виде (6). Каждая из зависимостей $q_{ij}(\tau; \theta_{ij})$ рассчитывалась на интервалах длительностью $T = 500 f_0^{-1}$, где частота дискретизации $f_0 = 100$ Гц. Представленные на рис. 9 и 10 данные относятся к интервалам: I $(1-500) f_0^{-1}$; II $(1201-1700) f_0^{-1}$; III $(2601-3100) f_0^{-1}$; IV $(3001-3500) f_0^{-1}$. Естественно полагать, что фиксируемые флуктуации локальных значений электрических потенциалов определяются флуктуациями гидродинамических потоков в окрестности микроэлектродов. Поэтому приведённые зависимости демонстрируют сложную динамику временных вариаций

таких потоков в примембранной области электролита. При этом по положению максимумов зависимостей $q_{ij}(\tau; \theta_{ij})$ от параметра θ_{ij} , как отмечалось выше, можно судить о направленности гидродинамических потоков. Если максимум $q_{ij}(\tau; \theta_{ij})$ реализуется при $\theta_{ij} = 0$, это означает, что либо поток электролита от электрода i к электроду j и соответствующий обратный поток компенсируются, либо внешние потоки из других примембранных областей создают одинаковую гидродинамическую обстановку в окрестности электродов i и j . В последнем случае характерный размер l локальных гидродинамических пульсаций должен быть соизмерим с расстоянием l_{ij} между электродами i и j , $l \sim l_{ij}$. При $l \gg l_{ij}$ должна проявляться независимость $q_{ij}(\tau; \theta_{ij})$ от θ_{ij} . В этом случае сигналы $V_i(t)$ и $V_j(t)$ не влияют друг на друга: их флуктуационная динамика определяется сторонними потоками электролита.

Рис. 9 и 10 демонстрируют разнообразие реализующихся гидродинамических потоков в примембранной области электролита в исследуемом запредельном режиме. Как следует из рис. 9, а–г, на временном интервале I сигналы $V_2(t)$ и $V_3(t)$ в среднем изменяются в противофазе ($q_{23} < 0$), причём не влияя друг на друга. Во временном интервале II ситуация изменяется: поток электролита от электрода 2 к электроду 3 формирует (в среднем) симбатное с $V_2(t)$ изменение сигнала $V_3(t)$, тогда как потоки от электрода 3 к электроду 2 определяют антибатный характер изменения сигналов $V_3(t)$ и $V_2(t)$. В интервале III фиксируемый максимум зависимости $q_{23}(\tau; \theta_{23})$ от θ_{23} оказывается связанным с развитием локальных пульсаций $l \sim l_{23} = 0,5$ мм, а не с компенсацией потоков электролита от электрода 3 к электроду 2 и обратно. На это указывает наличие корреляционных взаимосвязей $q_{31}(\tau; \theta_{31})$ между сигналами $V_3(t)$ и $V_1(t)$, измеряемыми на электродах 3 и 1, при отсутствии корреляций между электродами 4 и 2 (см. рис. 10).

Из рис. 9, д–з следует, что на временном интервале I потоки электролита между электродами 4 и 3 компенсируются (корреляции $q_{24}(\tau; \theta_{24})$ и $q_{35}(\tau; \theta_{35})$ незначительны), на интервалах II и IV поток от электрода 4 по направлению к электроду 3 превосходит обратный поток, а на интервале III корреляция между сигналами $V_4(t)$ и $V_3(t)$ практически исчезает. Рис. 9, и–л демонстрирует, что противоположно

направленные потоки между противостоящими электродами 3 и 11 на протяжении всего времени наблюдения $T_{\text{ит}}$ равны друг другу. При этом степень взаимного влияния этих потоков друг на друга проявляется в меньшей степени на интервалах I и III и оказывается наибольшей на временных интервалах II и IV. Из приведённых зависимостей следует, что максимальная скорость гидродинамических потоков между смежными электродами, отстоящими друг от друга на расстояниях 0,05 см, составляет $\sim 0,25$ см/с.

Полная картина динамики перераспределения во времени потоков электролита в примембранной области исследуемой электрохимической системы может быть получена при анализе корреляционных взаимосвязей сигналов между всеми 16 электродами.

Помимо рассмотренных примеров, предлагаемая методология анализа состояния и динамики сложных систем может найти очевидные приложения в исследовании разнообразных физических и физико-химических проблем (динамика фазовых переходов в протяжённых системах, кинетика гетерогенных каталитических и электрокаталитических превращений), в технологии изучения недр и мониторинге природных объектов, прогнозировании климатических и экосистемных изменений, в химической технологии (проблемы масштабирования турбулентных потоков в аппаратах с кипящим слоем и мембранных установках), для параметризации (введение «паспортных» параметров и/или паттернов) поверхностных структур, в том числе для разрешения проблем метрологии поверхности на нано- и микроуровне, в астрофизике (анализ вариаций активности звёздных и квазизвёздных объектов, в том числе с установлением взаимосвязей их одновременно измеряемых характеристик, таких, как излучение на разных частотах), в геофизике (проблемы прогнозирования атмосферных явлений, сейсмической активности в сейсмоопасных регионах, динамики процессов в магнитосфере Земли), в медицине (ранняя диагностика разнообразных болезней, включая нерешённые проблемы с ранним выявлением болезней Альцгеймера, Паркинсона, шизофрении по данным ЭЭГ) и генетике (возможная задача – установление признаков скрытой информации в некодирующих последовательностях, анализ динамических мутаций в этих областях).

Тем самым развитая ФШС-методология может рассматриваться как новая информационная технология – «информационно-шумовая спектроскопия» (Noise Informative Spectroscopy – NIS). Традиционно под информационными технологиями понимаются технологии компьютеров и компьютерных сетей, технологии записи, хранения и передачи больших объёмов информации. При этом базовое для компьютеров шенноновское представление информации в виде бит практически остаётся неизменным. Исключение составляют будущие квантовые компьютеры с единицами информации в виде блоков-матриц – кубитов. В ФШС-методологии вводится именно блоковая структура информационных единиц, связанных с нерегулярностями измеряемых динамических переменных – всплеска-

ми, скачками, изломами производных различных порядков на каждом пространственно-временном уровне иерархической организации исследуемых систем, что открыло новые возможности в информационном представлении сложных сигналов. Именно принятие нерегулярностей динамических переменных – всплесков, скачков, разрывов производных – в качестве информационной основы, информационных «цветов» ФШС-методологии позволило не только в наиболее общей феноменологической форме классифицировать всю содержащуюся в хаотических сериях информацию, но и достаточно уверенно извлекать необходимую её часть.

Литература

1. Kantz H., Schreiber T. Nonlinear Time Series Analysis. Cambridge: Cambridge University Press, 1997. – 304 p.
2. Шустер Г. Детерминированный хаос. Введение. – М.: Мир, 1988. – 240 с.
3. Тимашев С.Ф. Наука о «сложном»: феноменологическая основа и возможности приложения к решению проблем химической технологии // Теоретические основы химической технологии. 2000. Т. 34. № 4. – С. 339–352.
4. Тимашев С.Ф. Информационная значимость хаотических сигналов: фликкер-шумовая спектроскопия и её приложения // Электрохимия. 2006. Т. 42. № 5. – С. 480–524.
5. Тимашев С.Ф. Фликкер-шумовая спектроскопия в анализе хаотических потоков в распределённых динамических диссипативных системах // Журнал физической химии. 2001. Т. 75. № 10. – С. 1900–1908.
6. Тимашев С.Ф., Встовский Г.В. Фликкер-шумовая спектроскопия в анализе хаотических временных рядов динамических переменных и проблема отношения «сигнал-шум» // Электрохимия. 2003. Т. 39. № 2. – С. 149–162.
7. Тимашев С.Ф., Беляев В.Е., Тимашев П.С., Соловьёва А.Б. О параметризации поверхностных структур // Коллоидный журнал. 2006. Т. 68. № 4. – С. 525–538.
8. Встовский Г.В., Дещеревский А.В., Лукк А.А., Сидорин А.Я., Тимашев С.Ф. Поиск электрических предвестников землетрясений методом фликкер-шумовой спектроскопии // Физика Земли. 2005. № 7. – С. 3–14.
9. Тимашев С.Ф., Григорьев В.В., Будников Е.Ю. Фликкер-шумовая спектроскопия в анализе флуктуационной динамики электрического потенциала при «запредельной» плотности тока // Журнал физической химии. 2002. Т. 76. № 3. – С. 554–561.
10. Пархутик В.П., Тимашев С.Ф. Информативная сущность шума: новое в электрохимии кремния // Электрохимия. 2000. Т. 36. – С. 1378–1394.
11. Parkhutik V., Rayon E., Ferrer C., Timashev S., Vstovsky G. Forecasting of electrical breakdown in porous silicon using flicker-noise spectroscopy // Physica Status Solidi (a). 2003. V. 197. No. 2. – P. 471–475.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант 05-02-17079).