

УДК 534.22; 537.226.1; 532.62

И. Г. Симаков, Ч. Ж. Гулгенов, С. Б. Базарова  
Институт физического материаловедения  
Сибирского отделения Российской академии наук

## Акустоэлектрический метод определения диэлектрических характеристик жидкости в граничном слое

*Продемонстрирована возможность применения поверхностных акустических волн для определения диэлектрических характеристик жидкости в слое, граничащем с поверхностью пьезоэлектрического кристалла. Разработан и предложен акустоэлектрический метод определения диэлектрической проницаемости жидкости в граничном слое, основанный на регистрации изменения затухания и скорости поверхностных акустических волн. С помощью этого метода исследованы диэлектрические характеристики адсорбированной воды в диапазоне частот от 40 до 400 МГц. Показано, что зависимость диэлектрической проницаемости адсорбированной воды от относительного давления пара при фиксированной частоте поверхностной волны носит релаксационный характер. Предложенный акустоэлектрический метод позволяет определять диэлектрические характеристики жидкости в наноразмерных граничных слоях.*

### Акустоэлектрический метод, граничный слой жидкости, диэлектрические характеристики, поверхностные акустические волны, дисперсия скорости поверхностных акустических волн, адсорбция, адсорбированная вода, диэлектрическая релаксация

К числу всеобщих фундаментальных свойств материи относится поляризуемость – способность атомов и молекул к деформации их электронных оболочек во внешнем электрическом поле. Поляризуемость обеспечивает принципиальную возможность образования конденсированного состояния вещества за счет перераспределения электронной плотности между атомами и молекулами и возникновения сил их взаимного притяжения. Благодаря поляризуемости, изначально присущей атомам и молекулам, в природе реализуется принцип самоорганизации, который имеет место в цепи последовательного структурного усложнения: атом – молекула – вещество (жидкость) с различной электронной структурой. В обратном порядке эта цепочка служит концептуальной основой для постановки исследований атомно-молекулярного строения жидкости. Поляризационные свойства вещества в конденсированном состоянии выражаются через диэлектрическую восприимчивость  $\chi$ . Наряду с диэлектрической восприимчивостью жидкости на практике применяются ее диэлектрическая проницаемость  $\varepsilon = (1 + 4\pi\chi)$  и показатель преломления  $n = \varepsilon^{1/2}$ .

Кроме деформационной поляризации существует еще ориентационная поляризация ан-

самбля дипольных молекул, обусловленная тем, что внешнее электрическое поле на фоне беспорядочного движения молекул вызывает ориентацию диполей в направлении этого поля и формирует макроскопический электрический момент.

Развитие теории поляризации в настоящее время направлено на поиск непротиворечивых молекулярных моделей, обеспечивающих корректное описание связи между диэлектрическими величинами и параметрами молекулярной структуры.

Современный подход к описанию диэлектрической поляризации основан на представлении диэлектрической проницаемости в виде разложения в ряд по степеням ориентационной поляризуемости. При таком подходе задача теории поляризации переходит в плоскость установления связи диэлектрической проницаемости с корреляционными функциями, а через них – и с энергией межмолекулярного взаимодействия [1].

Другая сторона явления поляризации связана с динамическими процессами теплового движения молекул и атомов. Начало этим исследованиям было положено Дебаем в 1912 г. Было предложено феноменологическое уравнение частотной дисперсии диэлектрической проницаемости. В это уравнение был введен новый параметр тео-

рии – время диэлектрической релаксации. Дебаю также принадлежит первая молекулярная теория диэлектрической релаксации. В ней заложена простейшая модель свободного вращения дипольной сферы. Эта теория согласуется с экспериментом в лучшем случае по порядку величин, однако она оказалась хорошо применима к различным классам жидкостей.

При контакте твердой и жидкой фаз под воздействием поверхностных сил в жидкости образуется граничный слой с измененной структурой. Типичные граничные слои – это тонкие прослойки, смачивающие пленки и адсорбционные слои. Диэлектрические характеристики жидкости в граничной и объемной фазах существенно различаются, особенно в слоях полярных жидкостей [2]. Исследование диэлектрических свойств жидкости в граничной фазе позволяет получать необходимую информацию о ее молекулярной структуре, межмолекулярных взаимодействиях, динамике и механизмах молекулярных процессов. Сведений о диэлектрических характеристиках технологических жидкостей недостаточно в случаях, когда эти жидкости используются в качестве адсорбционных слоев и смачивающих пленок.

В связи с отсутствием теоретических методов расчета диэлектрических свойств жидкостей в граничной фазе для их изучения особое значение имеет применение экспериментальных методов. Определение диэлектрических характеристик жидкости в граничном слое сопряжено с объективными трудностями – малым размером объекта исследования, зависимостью структуры от поверхностных сил и динамическим характером равновесного состояния.

**Акустоэлектрический метод определения диэлектрических характеристик жидкости.** Для исследования диэлектрических свойств жидкости в граничном слое предлагается использовать поверхностные акустические волны (ПАВ), распространяющиеся в системе «граничный слой жидкости – пьезоэлектрический звукопровод».

Дисперсия ПАВ при взаимодействии с тонким слоем жидкости на поверхности пьезоэлектрика описывается уравнениями [3]

$$-\frac{\Delta v}{v} = \left( \frac{\rho_f v_f}{\rho_s v_s} \operatorname{tg} \theta + \pi K^2 \frac{\varepsilon_p \varepsilon'}{(\varepsilon_p + 1)^2} \right) \frac{h}{\lambda}, \quad (1)$$

$$\alpha = \left( \beta \frac{\rho_f}{\rho_s} \operatorname{ctg} \theta + \frac{\pi \omega K^2 \varepsilon_p \varepsilon''}{v_s (\varepsilon_p + 1)^2} \right) \frac{h}{\lambda}, \quad (2)$$

где  $\rho_f$  и  $\rho_s$  – плотности жидкости и твердого тела;

$\varepsilon_p = (\varepsilon_{yy} \varepsilon_{zz} - \varepsilon_{yz}^2)^{1/2}$ ,  $\varepsilon$  – относительные диэлектрические проницаемости пьезоэлектрика и жидкости соответственно;  $\theta = \arccos(v_f/v_s)$  – угол, под которым звуковые волны распространяются в слое жидкости;  $v_f$  – скорость звука в жидкости;  $v_s$  – скорость поверхностной волны;  $h$  – толщина жидкого слоя;  $K$  – коэффициент электромеханической связи. Для волн рэлеевского типа  $K^2 = 2(v_0 - v_m)/v_0$  (здесь  $v_m$ ,  $v_0$  – скорости ПАВ в случаях «металлизированной» и «свободной» поверхностей),  $\lambda$  – длина поверхностной волны,  $\omega$  – круговая частота,  $\varepsilon_{yy}$ ,  $\varepsilon_{zz}$ ,  $\varepsilon_{yz}$  – компоненты тензора диэлектрической проницаемости пьезоэлектрического звукопровода,  $\beta$  – коэффициент ослабления звука в жидкости, который учитывает потери на вязкое трение. Относительное изменение скорости  $\Delta v/v$  и затухание ПАВ  $\alpha$  пропорциональны толщине жидкого слоя  $h$ . Коэффициенты пропорциональности этих уравнений аддитивно учитывают возмущения условий распространения ПАВ, имеющих механическую и электрическую природу. Как следует из уравнений дисперсии ПАВ (1), (2), затухание и изменение скорости зависят от акустических и диэлектрических характеристик слоистой системы.

Исходя из линейных уравнений (1), (2) действительная и мнимая части комплексной диэлектрической проницаемости жидкости в слое  $\varepsilon = \varepsilon' + j\varepsilon''$  связаны с изменением акустических параметров ПАВ следующими выражениями [4]:

$$\varepsilon' = \frac{2(\varepsilon_p + 1)^2}{K^2 \varepsilon_p} \left( \frac{\Delta v}{h\omega} - \frac{\rho_f}{2\pi\rho_s} \sqrt{1 - v_f^2/v_s^2} \right); \quad (3)$$

$$\varepsilon'' = \frac{(\varepsilon_p + 1)^2}{K^2 \varepsilon_p} \left( \frac{2\alpha v_s^2}{h\omega^2} - \frac{\rho_f v_f \beta}{\pi\rho_s \omega \sqrt{1 - v_f^2/v_s^2}} \right). \quad (4)$$

Таким образом, относительную диэлектрическую проницаемость жидкости в граничном слое и тангенс угла ее диэлектрических потерь ( $\operatorname{tg} \delta = \varepsilon''/\varepsilon'$ ) можно определить, регистрируя изменения затухания и скорости ПАВ, обусловленные влиянием граничного слоя.

**Метод регистрации изменения амплитуды и скорости рэлеевских волн.** Для измерения затухания и скорости ПАВ можно воспользоваться

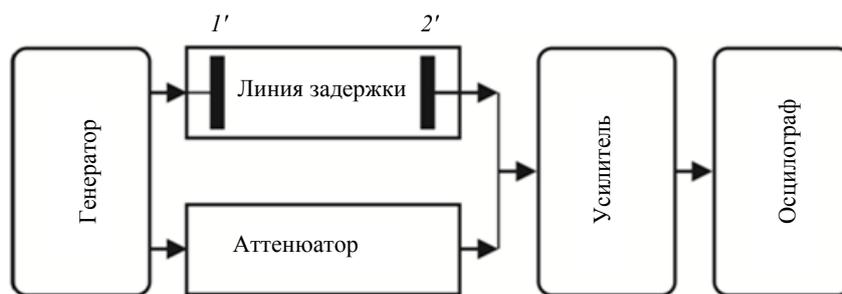


Рис. 1

фазово-интерференционным методом [5]. Блок-схема установки для измерения малых изменений затухания и скорости поверхностных акустических волн представлена на рис. 1. Установка включает в себя генератор сигналов, линию задержки, аттенюатор, усилитель и осциллограф. Линия задержки представляет собой пластину из пьезоэлектрического кристалла толщиной около 1 мм (звукопровод), на поверхности которой сформированы два встречно-штыревых преобразователя (ВШП).

С генератора высокой частоты сигнал передается на аттенюатор и линию задержки ПАВ. Звукопровод линии задержки ПАВ представляет собой плоскопараллельную пластинку, вырезанную из пьезокристалла ниобата лития ( $YZ$ -срез). На полированной поверхности звукопровода изготовлены излучающий  $1'$  и приемный  $2'$  ПАВ-преобразователи встречно-штыревого типа. Электрические сигналы: задержанный с приемного преобразователя  $2'$  и прямой, ослабленный аттенюатором до амплитуды задержанного сигнала, интерферируют на входном сопротивлении регистрирующего устройства. Результирующий сигнал измеряется регистрирующим устройством, которое включает в себя усилитель и осциллограф [5].

Результирующий сигнал определяется соотношением фаз и амплитуд прямого и задержанного сигналов. Чтобы не перегрузить усилитель, на вход регистрирующего устройства необходимо подавать прямой и задержанный сигналы в противофазе, предварительно выровняв их по амплитуде. Режим противофазной интерференции достигается перестройкой частоты генератора, а баланс амплитуд – регулировкой аттенюатора. В обоих случаях добиваются минимальной амплитуды сигнала на выходе регистрирующего устройства [5].

Изменение условий распространения упругих возмущений с ростом толщины адсорбционного слоя приводит к уменьшению амплитуды и ско-

рости ПАВ и, как следствие, к изменению частоты интерференционного минимума. Новое значение частоты интерференционного минимума регистрируется частотомером. Относительное изменение скорости поверхностных волн можно вычислить из соотношения  $\Delta v/v = \Delta f/f$ . Затухание ПАВ можно определить по разнице амплитуд результирующих сигналов, измеренных до и после изменения толщины адсорбционного слоя на соответствующих частотах интерференционного минимума.

**Апробация метода.** Описанный акустоэлектрический метод определения диэлектрических характеристик граничных жидкостей был экспериментально апробирован на адсорбированной воде. Для проведения диэлектрических исследований была разработана и изготовлена измерительная ячейка (рис. 2). Линия задержки представляла собой кристалл ниобата лития  $YZ$ -среза с оптически полированной рабочей поверхностью, на которой сформированы два ВШП. В эксперименте звукопровод помещался в замкнутый термостатированный объем над поверхностью бидистиллированной воды (рис. 2).

В парогазовой среде на поверхности звукопровода в результате адсорбции образуется тонкий граничный слой воды. Пары воды адсорбировались и, соответственно, слой формировался на рабочей поверхности звукопровода между излучающим и приемным ВШП. Предварительно поверхность звукопровода очищалась в тлеющем разряде. Толщина жидкого слоя при полимолекулярной адсорбции зависит от температуры и давления пара этой жидкости в зоне адсорбции, а также от лиофильности адсорбирующей поверхности звукопровода. Конечные размеры звукопровода приводят к тому, что появляются паразитные сигналы, обусловленные отражением ПАВ от торцов. Чтобы устранить действие этих сигналов на поверхность звукопровода, возле торцов наносились поглощающие покрытия.

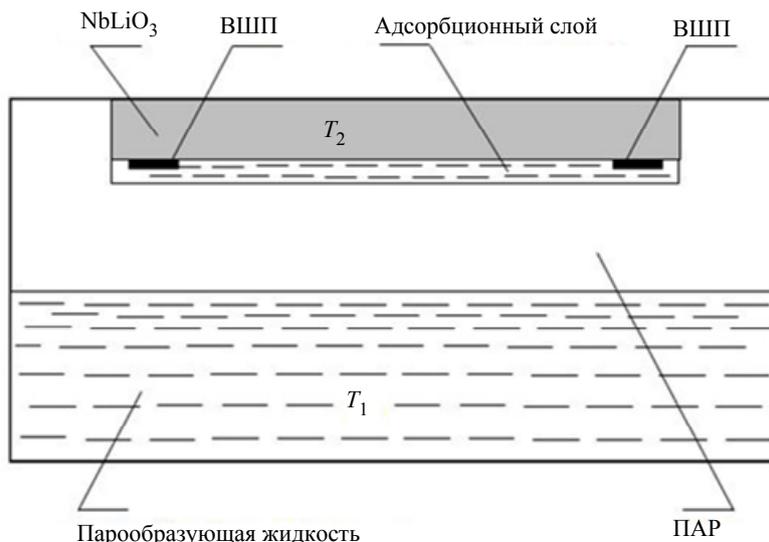


Рис. 2

В измерительной ячейке была предусмотрена возможность проводить акустические измерения и измерение толщины жидкого слоя эллипсометрическим методом. Температуру парообразующей жидкости и температуру звукопровода регулировали и поддерживали с помощью термостатов. Регулируя температуры парообразующей жидкости  $T_1$  и звукопровода  $T_2$ , можно задавать давление пара в зоне адсорбции. Для вычисления давления пара в этой зоне удобно воспользоваться уравнением Клапейрона–Клаузиуса:

$$\ln \frac{p}{p_s} = -\frac{Q}{R} \left( \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right),$$

где  $Q$  и  $R$  – теплота испарения (конденсации) воды и газовая постоянная [5]. Необходимое давление пара  $p$  в зоне адсорбции задавалось и контролировалось с точностью 0.1 %.

В эксперименте температура адсорбирующей поверхности звукопровода составляла 20 °С. Температура парообразующей жидкости варьировалась в диапазоне от 0 до 20 °С. Для определения диэлектрических характеристик адсорбированной жидкости регистрировали изменения затухания и скорости ПАВ, обусловленные влиянием адсорбционного слоя. Затем, используя результаты этих измерений, вычисляли значения  $\epsilon'$  и  $\epsilon''$  по формулам (3), (4).

Измерения проводились с помощью фазоинтерференционного метода при разных значениях центральной частоты в диапазоне 40...400 МГц. Толщину адсорбционного слоя определяли из изотермы адсорбции  $h(p/p_s)_T$ , а также по пара-

метрам эллиптической поляризации отраженного лазерного луча.

На рис. 3 представлена зависимость диэлектрической проницаемости адсорбированной воды от относительного давления пара (соответственно, толщины адсорбционного слоя). Кривая 1 соответствует частоте  $f = 43.2$  МГц, а кривая 2 –  $f = 388.8$  МГц. Характер экспериментальной зависимости указывает на наличие релаксационного процесса со временем релаксации  $\tau \sim 10^{-8}$  с. В объемной воде ближайшим по времени релаксационным процессом (со временем релаксации порядка  $10^{-10}$  с) является диэлектрическая релаксация Дебая [6].

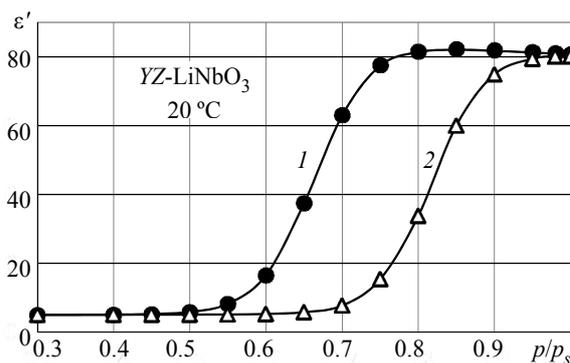


Рис. 3

С ростом частоты поверхностных волн область релаксации диэлектрической проницаемости адсорбированной воды смещается в область более высоких значений давления пара, при этом характер кривой остается практически неизменным. Это явление можно объяснить, если предположить что изменение времени диэлектрической

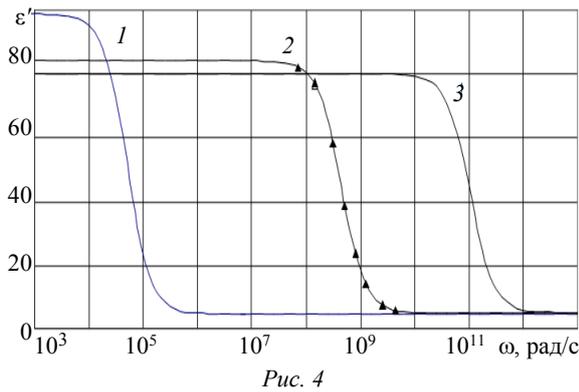


Рис. 4

релаксации адсорбированной воды и толщины адсорбционного слоя имеют экспоненциальную зависимость от давления пара  $p/p_s$ .

На рис. 4 представлена дисперсия диэлектрической проницаемости воды в трех состояниях: 1 – лед, 2 – адсорбированная вода, 3 – жидкая вода. Численная оценка проводилась в диапазоне частот 20...400 МГц с использованием действительной части уравнения Дебая. Маркерами обозначены экспериментальные данные диэлектрической проницаемости адсорбированной воды, рассчитанные с использованием уравнения (3) [6].

Существенное увеличение времени диэлектрической релаксации адсорбированной воды по сравнению с водой в жидкой фазе, предположительно, обусловлено изменением ее структуры под воздействием поля адсорбционных сил. Ана-

лиз результатов эксперимента и численных оценок (рис. 4) показывает, что частотная зависимость диэлектрической проницаемости адсорбированной воды хорошо согласуется с уравнением Дебая. Структурирующее воздействие поля адсорбционных сил должно усиливаться с уменьшением толщины адсорбционного слоя и температуры жидкости, которое приводит к возрастанию вязкости и времени диэлектрической релаксации адсорбированной воды.

Таким образом, поверхностные акустические волны, распространяющиеся в системе «граничный слой жидкости – пьезоэлектрический звукопровод», могут успешно использоваться в качестве инструмента исследования диэлектрических характеристик жидкости в граничном слое. Предложен метод, позволяющий определить дисперсию диэлектрических характеристик ( $\epsilon'$ ,  $\epsilon''$ ,  $\operatorname{tg} \delta = \epsilon''/\epsilon'$ ) и время диэлектрической релаксации  $\tau$  на основе измерения относительного изменения скорости и затухания поверхностных акустических волн на разных частотах. Процесс диэлектрической релаксации в адсорбированной воде, как и в случае объемной воды, может быть охарактеризован в рамках теории Дебая.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Потапов А. А. Ориентационная поляризация: Поиск оптимальных моделей. Новосибирск: Наука, 2000. 336 с.
2. Чураев Н. В. Тонкие слои жидкостей. Развитие исследований поверхностных сил // Коллоидный журн. 2000. Т. 62, № 5. С. 581–589.
3. Гулгенов Ч. Ж. Исследование теплофизических параметров граничных слоев полярных жидкостей акустоэлектронными методами: дис. ... канд. техн. наук: 01.04.14. Восточно-Сибирский гос. технол. ун-т, Улан-Удэ, 2010. 112 с.
4. Симаков И. Г., Гулгенов Ч. Ж., Гомбоев Р. И. Взаимодействие поверхностных акустических волн с

адсорбированной водой на поверхности ниобата лития // Вестн. Бурятского гос. ун-та. 2009. Вып. 2. Химия. Физика. С. 167–171.

5. Симаков И. Г., Гулгенов Ч. Ж. Регистрация изменения амплитуды и скорости рэлеевских волн на поверхности пьезоэлектрика // Вестн. Бурятского гос. ун-та. 2011. Вып. 3. Химия. Физика. С. 216–220.

6. Симаков И. Г., Базарова С. Б. Инструментарий исследования диэлектрических свойств адсорбированной воды // Пробл. механики совр. машин: материалы VII Междунар. науч. конф. Улан-Удэ: Изд-во ВСГУТУ, 2018. С. 305–308.

Simakov I. G., Gulgenov Ch. Zh., Bazarova S. B.

*Institute of Physical Materials Science, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences*

## ACOUSTOELECTRIC METHOD FOR DETERMINING THE DIELECTRIC CHARACTERISTICS OF A FLUID IN THE BOUNDARY LAYER

*Using surface acoustic waves to determine the dielectric characteristics of a liquid in the boundary layer is demonstrated. An acoustoelectric method for determining the dielectric constant of a liquid in the boundary layer is proposed. The dielectric characteristics of adsorbed water in the frequency range from 40 to 400 MHz are investigated. It is shown that the dependence of the dielectric permittivity of adsorbed water on vapor pressure at a fixed frequency of the surface wave is of a relaxation character. The developed acoustoelectric method allows one to study the electrophysical properties of nanoscale coatings and films. This method can successfully complement existing methods for studying the dielectric characteristics of boundary layers of liquids and relaxation processes in them.*

**Acoustoelectric method, boundary layer of a liquid, dielectric characteristics, surface acoustic waves, velocity dispersion of surface acoustic waves, adsorption, adsorbed water, dielectric relaxation**

---

УДК 620.179.16

А. В. Вагин, А. М. Инюкина

*Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет «ЛЭТИ» им. В. И. Ульянова (Ленина)*

## Уменьшение коэффициента отражения звуковой волны от слоистой среды при нормальном падении

*Исследована возможность уменьшения коэффициента отражения «звуковой волны давления», падающей нормально на поверхность слоистой среды. Для уменьшения коэффициента отражения звуковой волны выбран метод введения дополнительных слоев с параметрами плотность и скорость звука, которые обеспечивают плавный переход от одной среды к другой с минимальными потерями энергии на распространение. В качестве исследуемой модели такой среды используется структура «углеродистая сталь – металлургический шлак», разделенная на три и десять с переходными параметрами, изменяющимися линейно. В работе построены зависимости коэффициента отражения от круговой частоты при двух вариантах введения количества переходных слоев: три и десять. Показано, что при увеличении количества переходных слоев между средами происходит уменьшение коэффициента отражения звука.*

**Коэффициент отражения, нормальное падение, наклонное падение, слоистая среда, переходный слой, плотность среды, скорость звука**

При построении математических моделей, описывающих физические процессы в слоистых композитных средах различной толщины и параметров материалов, часто представляет интерес оценка коэффициента отражения волны от системы этих слоев. В настоящее время разнообразие конструкционных материалов в современном производстве чрезвычайно велико и имеет устойчивую тенденцию к нарастанию [1].

Расширение номенклатуры используемых материалов опирается на создание новых технологий, что в свою очередь сопровождается появле-

нием новых задач в области структуроскопии и дефектоскопии. Разработка таких средств контроля и диагностики должна опираться на физические предпосылки, связанные с особенностями волновых процессов в периодических слоистых средах.

Интерес к таким средам обусловлен тем фактом, что слоистые среды хорошо моделируют свойства не только сред геологического происхождения, но и композиционных материалов, а также материалов, применяемых в аддитивных технологиях. Известным примером применения результатов анализа теории слоистых сред могут