

УДК 534.18, 534.1

ИЗМЕРЕНИЕ В АКУСТИЧЕСКОМ РЕЗОНАТОРЕ ТЕРМОДИФФУЗИОННОГО ОТНОШЕНИЯ В БИНАРНОМ РАСТВОРЕ

К. Ф. Шипилов

Проведено исследование нелинейного акустического резонатора, заполненного расслаивающимся раствором, и показана возможность его использования для измерения параметров жидкости. Предлагаемый акустический метод основан на зависимости скорости звука в растворе от его концентрации, которая меняется вследствие термодиффузии в области распространения пучка. Анализ соотношений, описывающих пропускание резонатора, показал, что, измерив величины установившегося и минимального пропускания резонатора, можно найти значение термодиффузионного отношения в бинарном растворе, заполняющем резонатор.

Ключевые слова: термодиффузия в растворе, эффект Соре, акустический резонатор.

В [1] представлены результаты экспериментального исследования и теоретического описания теплового гистерезиса в акустическом резонаторе, заполненном вязкой жидкостью (87% водный раствор глицерина) с большой температурной производной скорости ультразвука. В зависимости от интенсивности возбуждающего ультразвука наблюдали бистабильный, автоколебательный и стохастический (нерегулярные изменения интенсивности ультразвука на выходе резонатора) режимы. В предложенной схеме открытого резонатора одним из зеркал был пьезокерамический излучатель, а другим – плоская, отполированная и хорошо отражающая на рабочей частоте ультразвука металлическая пластина. Нагрев жидкости при поглощении ультразвука ведет к плавной перестройке собственных частот резонатора, линейно зависящих от скорости звука в заполняющей среде. Акустические нелинейные явления в резонаторе по многим параметрам сходны с оптическими, например, с бистабильным ограничением интенсивности

Учреждение Российской академии наук Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 119991, Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: kfship@kapella.gpi.ru.

при формировании импульсов лазерного излучения [2]. Широкое техническое использование оптических бистабильных устройств, намеченное в [3], позволяет надеяться, что их акустические аналоги также найдут свои применения.

Пропускание нелинейного высокочастотного акустического резонатора, как показано в [1], очень чувствительно к небольшим набегам волн на его длине. Это обстоятельство может позволить применить резонатор для измерения параметров заполняющей его жидкости, например, термодиффузионного отношения k_T в бинарном растворе. Температурный градиент, возникающий в зоне распространения ультразвукового пучка, вызывает, вследствие термодиффузии (эффект Соре), диффузионный поток и соответственно градиент концентрации в стационарном состоянии. В [4] показано, что эффект Соре дает основной вклад в изменение концентрации раствора в области распространения ультразвукового пучка. Обратный эффекту Соре – эффект Дюфора – возникновение тепловых потоков вследствие градиента концентрации, в жидкостях слаб и полностью маскируется звукоиндуцированным нагревом. Эффект Соре количественно характеризует термодиффузионное отношение k_T , равное отношению температурного градиента к индуцируемому им градиенту концентрации. Термодиффузионное отношение и коэффициент термодиффузии $D_T = D \cdot k_T$ (здесь D – коэффициент обычной “броуновской” или массовой диффузии) обычно измеряют оптическим методом по углу отклонения лазерного луча, прошедшего через раствор, в котором создан градиент температуры. Угол отклонения определяет зависимость показателя преломления раствора от концентрации, но результаты измерений иногда не однозначны, из-за присутствия, например, микротечений [5]. Следовательно, альтернативный метод измерения величин k_T и D_T представляется актуальным. Предлагаемый акустический метод основан на измерении зависимости скорости ультразвука в растворе от концентрации раствора, которая меняется вследствие термодиффузии в области распространения пучка. Поскольку время установления стационарного распределения температуры существенно меньше, чем время установления стационарного градиента концентрации, так как в жидких растворах коэффициент температуропроводности χ во много раз ($\sim 10^2$) больше коэффициента термодиффузии, это обстоятельство позволяет разделить тепловой и концентрационный вклады в набег фаз в резонаторе.

Рассмотрим акустический открытый резонатор длиной l , заполненный раствором с коэффициентом поглощения δ_0 , ограниченный зеркалами с коэффициентами отражения $R_1 = R_2 = R$ по интенсивности, причем одним из зеркал служит пьезокерамический излучатель ультразвука интенсивности I_i на частоте ω . Уравнения для медленной ам-

плитуды звукового давления и приращения температуры T в плосковолновом приближении, с учетом только тепловой нелинейности [1], дополним уравнением для концентрации с тяжелой компоненты раствора, учитывающим процессы массовой диффузии и термодиффузии [4]:

$$\partial^2 p / \partial x^2 + (\omega/v_0)^2 p = i(\omega/v_0)\delta_0 p - 2(\omega/v_0)^2 (\gamma_T T + \gamma_c c) p,$$

$$\partial T / \partial t - \chi \nabla^2 T = (\delta_0 / 2p^2 c_p v_0) |p|^2, \quad (1)$$

$$\partial c / \partial t = D(\nabla^2 c + k_T \nabla^2 T),$$

где $\gamma_T = |\partial \ln v_0^2 / \partial T| / v_0$, $\gamma_c = |(\partial v / \partial c) / \partial v_0|$, v_0 – скорость звука при начальной температуре, c_p – удельная изобарическая теплоемкость, ρ_0 – исходная плотность раствора, χ – коэффициент температуропроводности, $\chi = \kappa / c_p \rho_0$, κ – коэффициент теплопроводности. Для того чтобы получить укороченные уравнения для встречных звуковых волн в резонаторе $p = p_f e^{-ikx} + p_b e^{ikx}$ и концентрации раствора, введем безразмерные функции:

$$I_{f,b} = |p_{f,b}|^2 / (2p v_0 I_i),$$

$$\phi = -\arg(p_f) + \arg(p_b),$$

$$\theta_0 = T_0 2\omega \gamma_T / v_0$$

и параметры задачи: $b_1 = R$, $b_2 = 2I_i a^2 \delta_0 l \omega \gamma_T / \rho c_p v_0 \chi$, $b_3 = (2ka)^2$, $b_4 = 2(\omega l / v_0 - \pi n)$, $b_5 = e^{-2\delta_0 l}$, n – целое число, тогда

$$\partial c / \partial t = -a_1(c + a_2 \theta_0),$$

$$\partial \theta_0 / \partial t = -\theta_0 + b_2(I_f + I_b),$$

$$\partial I_{f,b} / \partial x = \pm \ln b_5 I_{f,b},$$

$$\partial \phi / \partial x = \theta_0 + c,$$

здесь $a_1 = D/\chi$, $a_2 = k_T \gamma_c / \gamma_T$. Граничные условия имеют вид:

$$I_b(1, t) = b_1 I_f(1, t),$$

$$I_f(0, t) + b_1 I_b(0, t) - 2(b_1 I_b(0, t) I_f(0, t))^{1/2} \cos(\phi(1, t) + b_4),$$

$$\phi(0, t) = \theta_0(x, 0) = 0,$$

$$c(x, 0) = 0.$$

В приближении среднего поля система уравнений примет вид:

$$\begin{aligned}\partial c / \partial t &= -a_1(c + a_2\theta_0), \\ \partial \theta_0 / \partial t &= -\theta_0 + 2b_2J,\end{aligned}\tag{2}$$

где $J = b_5/[1 + (b_1b_5)^2 - 2b_1b_5 \cos(\theta_0 + c + b_4)]$, $c = c(1, t)$, $c(0) = \theta_0(0) = 0$. При вычислении сдвига фаз $\phi = \theta_0 + c$ будем учитывать лишь линейные по θ_0 и c члены в этой системе уравнений (2), кроме того, положим для простоты $b_4 = 0$. В этом пределе зависимость $\phi(t)$ описывается суммой экспоненциальных функций:

$$\begin{aligned}\phi &= b_2I_T^0[(1 - a_2) - (1 - a_1 + a_1a_2)e^{-t}/(1 - a_1) + a_2e^{-a_1t}/(1 - a_1)], \\ I_T^0 &= (1 - b_1)b_5/(1 - b_1b_5)^2.\end{aligned}\tag{3}$$

Здесь I_T – значение интенсивности звука на выходе из резонатора. Пропускание резонатора при $\phi < 1$ аппроксимируем функцией Лоренца:

$$I_T(t) \approx I_T^0/[1 + b_1b_5\phi^2/(1 - b_1b_5)^2],$$

установившееся значение пропускания резонатора:

$$I_T^s = I_T^0/[1 + b_1b_5(I_T^0b_2(1 - a_2)/(1 - b_1b_5))^2],$$

зависит от коэффициента a_2 , определяющего термодиффузионное отношение.

Пропускание резонатора достигает максимального значения в момент времени:

$$t_{\min} = \ln[(1 - a_1(1 - a_2))/a_1a_2]/(1 - a_1),$$

для типичных растворов $a_1, a_1a_2 \ll 1$, поэтому в размерных переменных это выражение имеет вид

$$t_{\min} \approx (a_2/\chi)\ln(\chi\gamma_T/D_T\gamma_c).$$

Медленное увеличение пропускания до величины I_T^s при $t_{\min} < t < a_1^{-1}$ длится около 10^3 с и определяется процессом термодиффузии. Разность величин, обратных минимальному значению пропускания резонатора и его стационарному значению, пропорциональна коэффициенту a_2 :

$$1/I_T(t = t_{\min}) - 1/I_T^s = 8a_2b_2^2b_5I_T^0(1 + a_1\ln(a_1a_2))/(1 - b_1).\tag{5}$$

Таким образом, измерив в эксперименте величины минимального и установившегося пропускания резонатора, по формуле (5) можно рассчитать значение термодиффузионного отношения k_T в бинарном растворе, заполняющем резонатор.

Проведем оценки для типичного раствора, заполняющего резонатор ($l \sim 1$ см, $R \sim 0.9$), $I_i \sim 0.1$ Вт/см², $\gamma_c \sim 10^{-2}$ К⁻¹, $a_1 \sim 10^{-2}$, $a_2 \sim k_T$. Пусть начальное пропускание $I_T = 1.0$, минимальное значение $I_T(t = t_{\min}) = 0.55$, тогда, согласно (5), $1/I_T(t = t_{\min}) - 1/I_T^s \sim 10^3 k_T$. Проведенные оценки показывают, что термодиффузионный вклад в изменение пропускания резонатора измерим даже при малых k_T .

Таким образом, для резонатора, заполненного бинарным раствором, различие времен установления тепловой и концентрационной нелинейностей позволяет выделить термодиффузионный вклад в изменение пропускания. Использование резонатора высокой добротности дает возможность измерить акустическим методом величину термодиффузионного отношения в бинарном растворе.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, гранты № 09-02-01186-а, № 09-02-01082-а и ФЦП “Научные и научно-педагогические кадры инновационной России” (гос. контракт № П956).

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] Г. А. Ляхов, А. К. Проскуряков, О. В. Умнова, К. Ф. Шипилов, Акуст. журн. **39**, 299 (1993).
- [2] Н. Гиббс, *Оптическая бистабильность* (М., Мир, 1986).
- [3] А. М. Прохоров, О. Г. Семенов, К. Ф. Шипилов, Т. А. Шмаонов, Изв. РАН, сер. физич., **43**, 363 (1979).
- [4] Ф. В. Бункин, Г. А. Ляхов, М. Ю. Романовский, Труды ИОФАН **6**, 103 (1987).
- [5] P. Colodner, H. Williams, S. Moe, J. Chem. Phys. **88**, 6512 (1988).

Поступила в редакцию 29 декабря 2010 г.