АКУСТИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ

Том XIV 1968 Вып. 1

УДК 534.286.2

ПОГЛОЩЕНИЕ ЗВУКА В НЕКОТОРЫХ ЖИДКИХ МЕТАЛЛАХ

М. Б. Гитис, И. Г. Михайлов, С. Ниязов

Измерено поглощение звука в расплавленных индии, свинце, цинке и кадмии в интервале температур от точки плавления до 850°, на частотах 60 и 100 *Мгц*. Показано, что температурная зависимость коэффициента поглощения звука не является линейной, что указывает на существование в исследованных металлах объемной вязкости. Температурный ход избыточного поглощения звука не может быть описан в рамках существующих теорий структурной релаксации.

Исследование поглощения звука в расплавленных металлах представляется весьма интересным как для физики жидкого состояния, так и для металлофизики. Это связано с тем, что жидкие металлы в структурном отношении являются достаточно простыми жидкостями, а следовательно, подходящими объектами для изучения структурной релаксации и ее влияния на поглощение звука. С другой стороны, так как в первом приближении электронные свойства жидких металлов могут быть описаны в рамках модели почти свободных электронов, поддающейся теоретическому анализу, измерение поглощения звука несет весьма ценную информацию о кинетике электрон-ионных процессов в расплавах.

Как известно, коэффициент поглощения звука в жидкостях по теории Стокса — Кирхгофа описывается следующим выражением:

$$\alpha_{\text{кл}} = \frac{2\pi^2 f^2}{\rho c^3}\left(\frac{4}{3}\eta + \frac{c^2 K T \varkappa^2}{I C_p^2}\right), \tag{1}$$

где ρ — плотность, T — температура, c — скорость звука, f — частота, η — сдвиговая вязкость, K — коэффициент теплопроводности, $\varkappa$ — коэффициент объемного расширения, C_p — теплоемкость при постоянном давлении, I — механический эквивалент тепла.

Обычно в жидких металлах коэффициент поглощения звука равен $10^{-16} f^2$ *см*$^{-1}$, в то время как потери вследствие сдвиговой вязкости дают $0{,}5 \cdot 10^{-17} f^2$ *см*$^{-1}$ (η порядка единиц сантипуаз), т. е. практически все поглощение звука в расплавах металлов связано с потерями из-за теплопроводности. Однако вследствие малой точности в определении теплопроводности (5—10% и более) определение избыточного поглощения звука сильно затрудняется. Это и приводит к тому, что для одних и тех же расплавов различные авторы приводят разные значения $\alpha_{\text{кл}}$ [1]. Так как $\alpha_{\text{кл}} \sim T$, а теплопроводность и теплоемкость меняются с нагреванием незначительно, то расширение температурного интервала исследований позволит сделать более надежные заключения о существовании или отсутствии объемной вязкости.

Однако практически все работы по измерению коэффициента поглощения звука в жидких металлах выполнены в весьма узком температурном диапазоне вблизи плавления (см. обзор [1]). Вероятно, это обусловлено главным образом тем, что расширение температурного интервала вплоть до точки Кюри пьезокварцев и выше требует применения охлаждаемых

изолирующих стержней, аналогичных описанным в работе [2]. При этом, получения заметного ослабления сигнала вследствие поглощения прихо- поскольку поглощение звука в расплавленных металлах весьма мало, для дится использовать достаточно высокие частоты. Отсюда следует, что волноводы должны изготавливаться из материалов с малым коэффициентом поглощения звука. Кроме того, вполне очевидно, что не должно существовать взаимодействия волноводов с исследуемым расплавом. Вероятно, наиболее подходящим материалом для этих целей является плавленый кварц, который, однако, довольно плохо смачивается жидкими металлами. Это сильно затрудняет измерение поглощения.

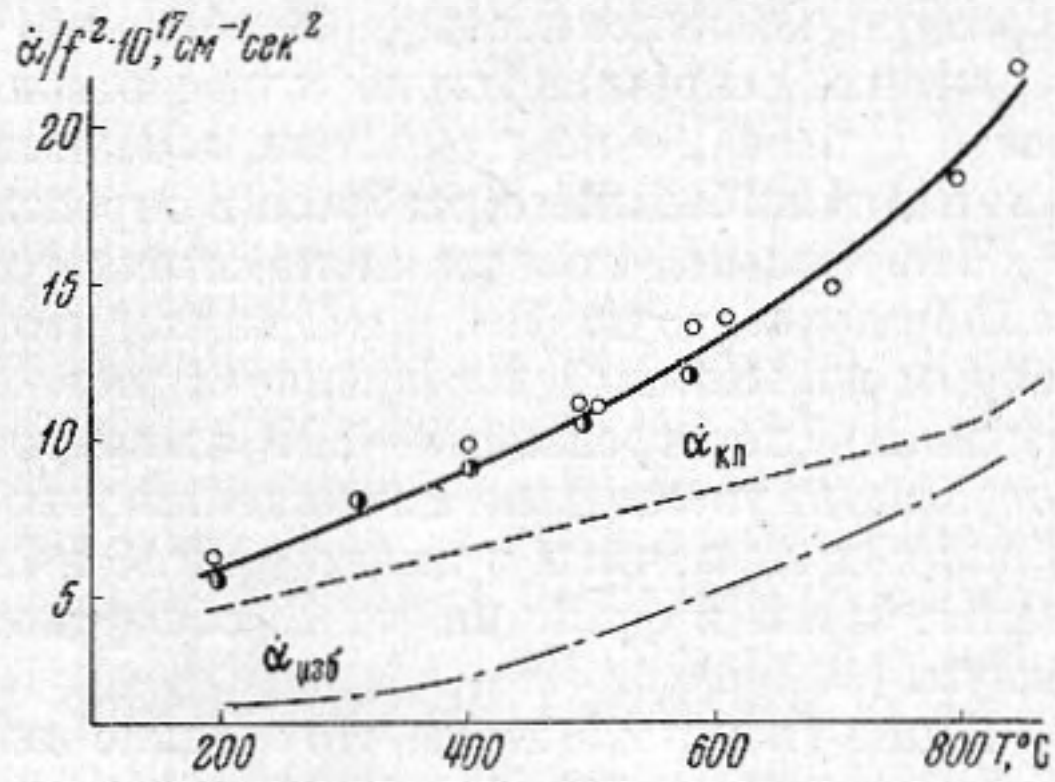
Нами была использована установка, позволившая измерять коэффициент поглощения звука в жидких металлах до температур $\sim 1000°$ с относительной погрешностью порядка 7—10%. Механическая часть установки ничем не отличалась от описанной в работе [2]. Волноводы и тигель для помещения жидкого металла были изготовлены из плавленого кварца. Длина волноводов равнялась 150 *мм*, диаметр — 30 *мм*. Все измерения проводились в атмосфере аргона. Предварительно металл обезгаживался, что достигалось плавлением образца и дальнейшим длительным нагревом его под вакуумом 10^{-3} *мм* рт. ст. Измерения проводились обычным импульсным методом с использованием двух преобразователей на частотах 60 и 100 *Мгц*.

Вследствие малого поглощения звука в жидких металлах α даже на частоте 100 *Мгц* оказывается порядка единицы, т. е. для наблюдения заметного ослабления сигнала из-за поглощения нужны довольно большие изменения акустического пути в расплаве. При использовании длинных волноводов это может приводить к нарушению параллельности между торцами стержней задержки. Это обстоятельство требовало тщательной юстировки волноводов. Экспериментальные точки нами снимались через 1 *дб*. Такие незначительные изменения сигнала не могут быть хорошо зарегистрированы на экране осциллографа. Поэтому в качестве регистрирующего прибора нами использовался пиковый вольтметр В4-1А, а зондирующий импульс подавлялся путем тщательного экранирования входа приемного устройства. В качестве аттенюатора использовался стандартный широкополосный аттенюатор типа ДО-7. Аттенюатор дополнительно калибровался по дистиллированной воде, для которой было принято $\alpha / f^2 = 25 \cdot 10^{-17}$ *см*$^{-1}$*сек*^{2}.

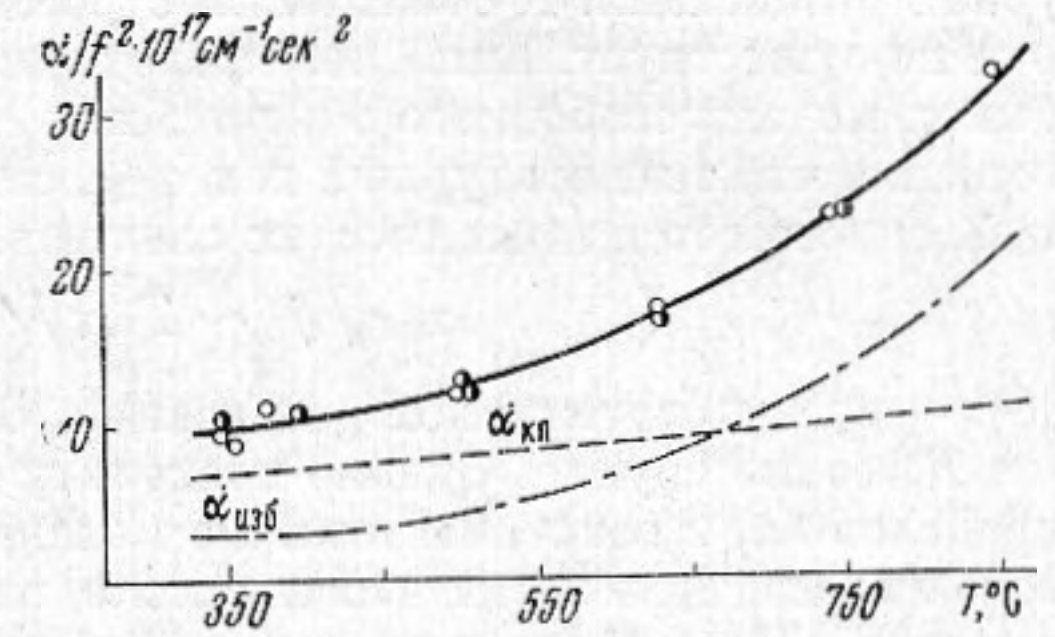
Описанным способом были измерены коэффициенты поглощения звука в жидких индии, свинце, цинке и кадмии в диапазоне температур от плавления до 850°. Выбор объектов измерений диктовался следующими соображениями. Свинец и индий относятся к металлам, которые мы на основании данных по температурной зависимости скорости звука назвали «нормальными». В них радикальная перестройка структуры заканчивается в точке плавления. Дальнейшее же нагревание сопровождается плавным разрыхлением плотноупакованной структуры, и, как следствие этого, скорость звука линейно уменьшается с температурой.

Иначе себя ведет скорость звука в жидких цинке и кадмии. Хотя в структурном отношении эти металлы ничем не отличаются от «нормальных», скорость звука в них с нагреванием меняется нелинейно. Аномально мал в них и температурный коэффициент электропроводности. В работе [3] было показано, что в пренебрежении зависимостью от объема радиальной функции распределения скорость звука в расплавленных металлах однозначно определяется внутренней энергией металла. Сопоставление экспериментальных и расчетных значений для скорости звука дало хорошее согласие практически для всех многовалентных металлов, за исключением цинка и кадмия, для которых весьма существенна зависимость радиальной функции распределения от объема. Все это позволяло ожидать появления в жидких цинке и кадмии особенностей в температурной зависимости коэффициента поглощения звука. На фиг. 1—4 приведены зависимости коэффициентов поглощения звука в функции от температуры соответствен-

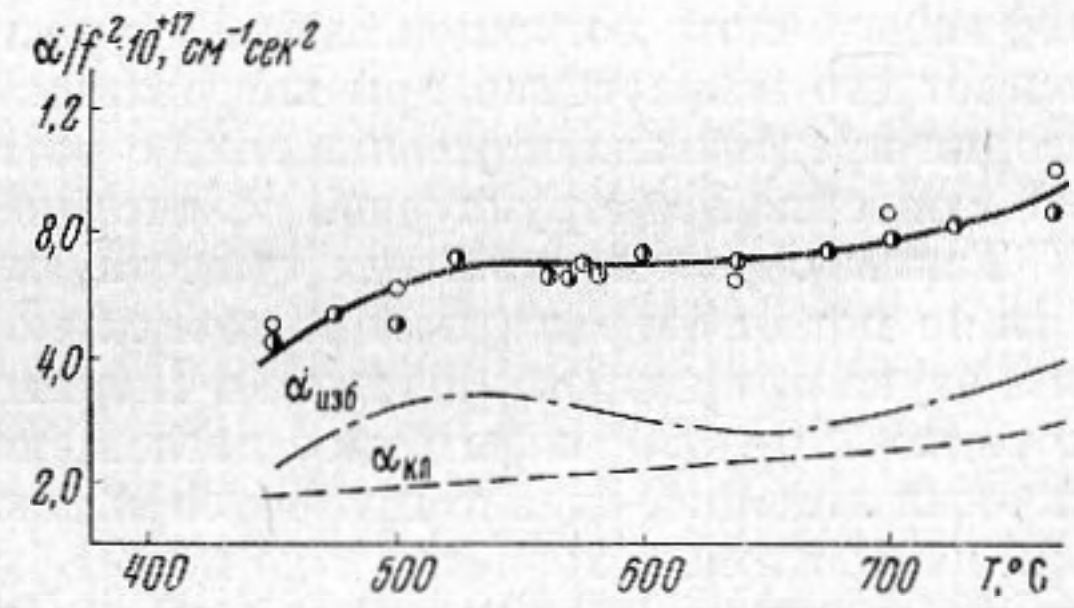
но для расплавленного индия, свинца, цинка и кадмия. Сплошные кривые показывают экспериментальные результаты (точки относятся к измерениям на частоте 60 *Мгц*, а крестики — 100 *Мгц*) *, пунктирная линия соответствует температурной зависимости коэффициента поглощения, рассчитанного по формуле (1), а штрих-пунктирная показывает поведение избыточного коэффициента поглощения звука. Как и следовало ожидать, изменения коэффициента поглощения звука в зависимости от температуры для однотипных металлов совершенно аналогичны: в индии и свинце поглощение звука монотонно растет с повышением температуры; в цинке же и кадмии сразу за плавлением коэффициент поглощения звука заметно увеличивается, а затем в пределах ошибок измерения остается постоянным и лишь при приближении к кипению снова наблюдается увеличение поглощения звука (для Cd температура кипения равна 765°, а для Zn — 906°). Легко видеть, что экспериментальная зависимость от температуры заметно отличается от зависимости, предсказываемой формулой (1). Действительно, согласно этой формуле, α практически пропорционально T, так как ρ, c, K и C_p для всех изученных нами металлов с нагреванием изменяются очень мало [4—7]. Следовательно, наши опыты показывают, что в исследованных жидких металлах наряду с поглощением звука, вызванным теплопроводностью и дающим $\alpha_{кл} \sim T$, присутствует и избыточное поглощение звука, изменяющее тем-



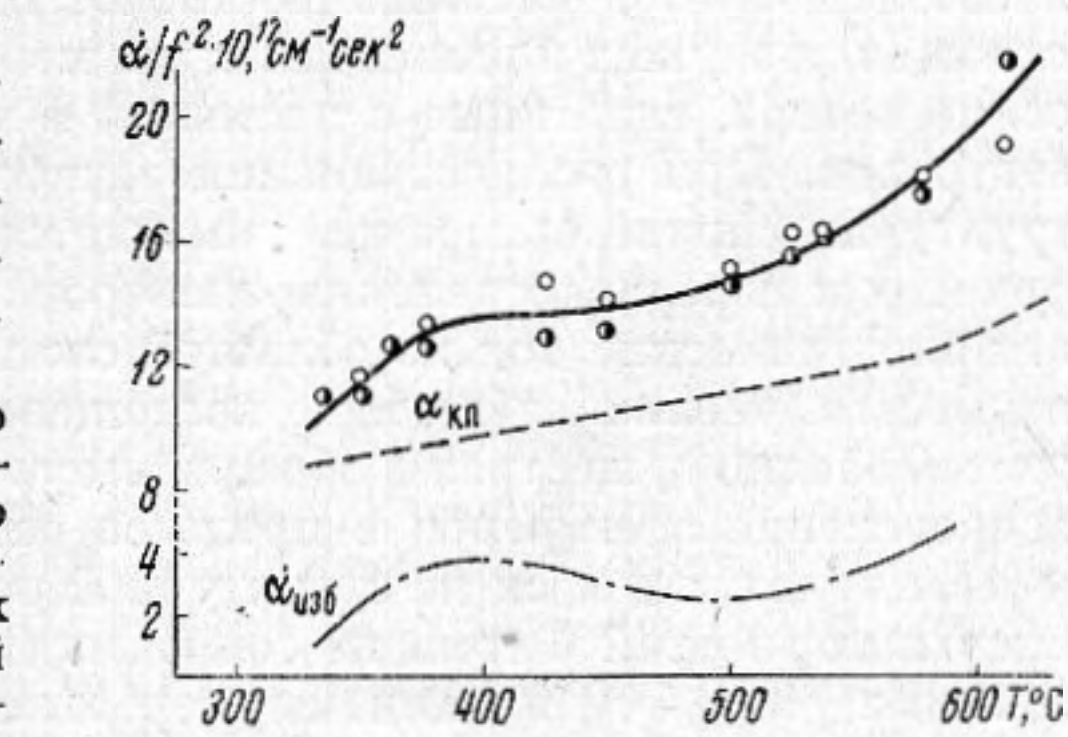
Фиг. 1



Фиг. 2



Фиг. 3



Фиг. 4

* Из общих соображений можно предположить, что для жидких металлов время релаксации должно быть гораздо меньше 10^{-8} *сек*. Таким образом, совпадение в пределах погрешности измерений значений α / f^2 при частотах 60 и 100 *Мгц* может явиться критерием правильности измерений.

пературную зависимость α. Необходимо подчеркнуть, что последнее утверждение основывается на существовании разной температурной зависимости α и $\alpha_{кл}$, а не на разных абсолютных значениях этих величин, что при наличии большого разброса в определении K и C_p весьма существенно.

Что касается поведения избыточного поглощения звука в функции от температуры, то из фиг. 1 и 2 видно, что в индии и свинце с ростом температуры избыточный коэффициент поглощения сначала растет довольно медленно (перегревы 100—200° выше точки плавления). При дальнейшем нагревании увеличение поглощения ускоряется и становится нелинейным. В жидких же кадмии и цинке (фиг. 3 и 4) коэффициент избыточного поглощения звука в функции от T обнаруживает довольно отчетливый максимум.

Выше уже отмечалось, что жидкие цинк, кадмий, свинец и индий имеют плотноупакованную атомную структуру и, следовательно, в структурном отношении являются простыми жидкостями. Отсюда следует, что из всех возможных релаксационных механизмов в них наиболее вероятна структурная релаксация. К сожалению, строгой теории структурной релаксации пока не существует. Наиболее последовательно соответственные расчеты в рамках модели свободного объема были выполнены в работе [8], где было показано, что температурный ход $\alpha_{изб}$, связанного со структурной релаксацией, описывается зависимостью следующего вида:

$$\alpha_{изб} / f^2 \sim T\omega\tau / 1 + (\omega\tau)^2, \qquad (2)$$

где τ — время структурной релаксации. Оценить теоретически зависимость τ от T весьма трудно. Однако поскольку процессы перестройки структуры определяются в основном теми же механизмами, что и сдвиговая вязкость, то можно предположить, что τ, так же, как и вязкость, уменьшается с температурой. Иными словами, согласно формуле (2), избыточное поглощение звука с нагреванием должно изменяться медленнее, чем пропорционально T, т. е. соотношение (2) не вполне верно описывает экспериментальный ход избыточного поглощения звука в расплавленных металлах, хотя и объясняет его возрастание при нагревании. Попутно отметим, что дырочная теория предсказывает уменьшение с ростом температуры объемной вязкости, связанной со структурной релаксацией [9].

Таким образом, в рамках существующих теорий структурной релаксации не может быть полностью объяснено поведение избыточного поглощения звука при нагревании даже в «нормальных» металлах. При перегревах порядка 200—300° избыточное поглощение в индии и свинце растет практически линейно, однако при более высоких температурах возрастание $\alpha_{изб}$ при нагревании ускоряется и не может быть описано формулой (2). В цинке же и кадмии температурная зависимость избыточного коэффициента поглощения может быть описана, согласно работе [8], лишь при предположении, что τ при нагревании ведет себя весьма сложным образом, что вряд ли соответствует действительности. Вероятно, при расчете коэффициента поглощения звука в жидких металлах необходимо учитывать еще специфические потери, связанные с наличием в металлах газа почти свободных электронов. При распространении звуковой волны вследствие изменения структуры ближнего порядка изменяется локальная энергия Ферми, что приводит к перераспределению электронов проводимости. При этом возникает электрический ток из областей сжатия в области разрежения, что, разумеется, увеличивает общее поглощение звука. Понятно, этот механизм будет особенно существен в области высоких температур. Кроме того, перераспределение электронов в процессе распространения звука должно существенно сказываться на структурной релаксации, так как выравнивание локальных энергий Ферми не сопровождается полной компенсацией избыточного заряда. Эти механизмы, вероятно, должны проявляться в жидких цинке и кадмии особенно резко, так как их свойства весьма чувствительны к деформациям [3].

ЛИТЕРАТУРА

1. М. Б. Гитис, И. Г. Михайлов. Распространение звука в жидких металлах. Обзор. Акуст. ж., 1966, 12, 2, 145—159.
2. В. В. Байдов, М. Б. Гитис, В. В. Дымов, И. Г. Михайлов, Л. Л. Кунин. Установка для измерения скорости звука в жидких металлах. Ультразвук. техн., 1965, 2, 17—21.
3. М. Б. Гитис, И. Г. Михайлов. К расчету скорости звука в жидких металлах. Акуст. ж., 1967, 13, 4, 556—561.
4. R. N. Lyon. Liquid metals handbook. Atomic energy commision, 1950.
5. М. Б. Гитис, И. Г. Михайлов. Скорость звука и сжимаемость некоторых жидких металлов. Акуст. ж., 1965, 11, 4, 434—437.
6. М. Б. Гитис, И. Г. Михайлов. О связи скорости звука и электропроводности в жидких металлах. Акуст. ж., 1966, 12, 1, 17—21.
7. Р. П. Юрчак, Л. П. Филиппов. Измерение температуропроводности жидких металлов, Теплофиз. выс. температур, 1964, 2, 5, 696—704.
8. А. И. Ансельм. Теория поглощения ультразвуковых волн в жидкостях. Ж. эксп. и теор. физ., 1945, 15, 751—757.
9. И. Г. Михайлов, В. А. Соловьев, Ю. П. Сырников. Основы молекулярной акустики. М., «Наука», 1964.

Ленинградский государственный университет

Поступила в редакцию 1 июня 1967 г.