с ростом температуры коэффициент поглощения звука увеличивается. Однако в области температур, превышающих 550°, наблюдается замедление роста коэффициента поглощения. Интересно отметить, что в работе [6] при этих же температурах было также отмечено уменьшение температурного коэффициента скорости звука. По нашему мнению, данные акустических исследований говорят о том, что жидкое олово не может рассматриваться как «нормальный металл». Это согласуется с результатами рентгеноструктурного анализа расплавленного олова [7], согласно которым при плавлении в олове образуется плотнейшая упаковка; при этом продолжает существовать и другая упаковка, соответствующая твердому состоянию. Эта структура с ростом температуры размывается, что, по-видимому, и находит отражение в поведении коэффициента поглощения звука. На той же фигуре представлены зависимости от температуры классического и избыточного поглощения звука. Данные, необходимые для расчета, заимствованы из работ [1, 4].

ЛИТЕРАТУРА

1. М. Б. Гитис, И. Г. Михайлов. Распространение звука в жидких металлах. Обзор. Акуст. ж., 1966, **12**, 2, 145—159.
2. М. Б. Гитис, И. Г. Михайлов, С. Ниязов. Поглощение звука в некоторых жидких металлах. Акуст. ж., 1968, **14**, 1, 57—61.
3. М. Б. Гитис, И. Г. Михайлов. Поглощение звука в расплавленных полуметаллах. Письма. Ж. эксперим. и теор. физ., 1968, **8**, 5, 224—229.
4. R. N. Lyon. Liquid metals handbook. Atomic energy commision, 1950.
5. Р. П. Юрчак, Л. П. Филиппов. Измерение температуропроводности жидких металлов. Теплофиз. выс. темпер., 1964, **2**, 5, 696—704.
6. М. Б. Гитис, И. Г. Михайлов. Скорость звука и сжимаемость некоторых жидких металлов. Акуст. ж., 1965, **11**, 4, 434—437.
7. H. Richter, D. Handtman. Structur von geschmolzenem Zinn bei 250° und 750° C nach verschiedenen Auswertungsverfahren. Z. Phys., 1964, **181**, 2, 206—232.

Ленинградский государственный университет

Поступило в редакцию 3 сентября 1969 г.

УДК 534.29

О СОНОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ВОДНЫХ РАСТВОРОВ САХАРОЗЫ И ГЛИЦЕРИНА

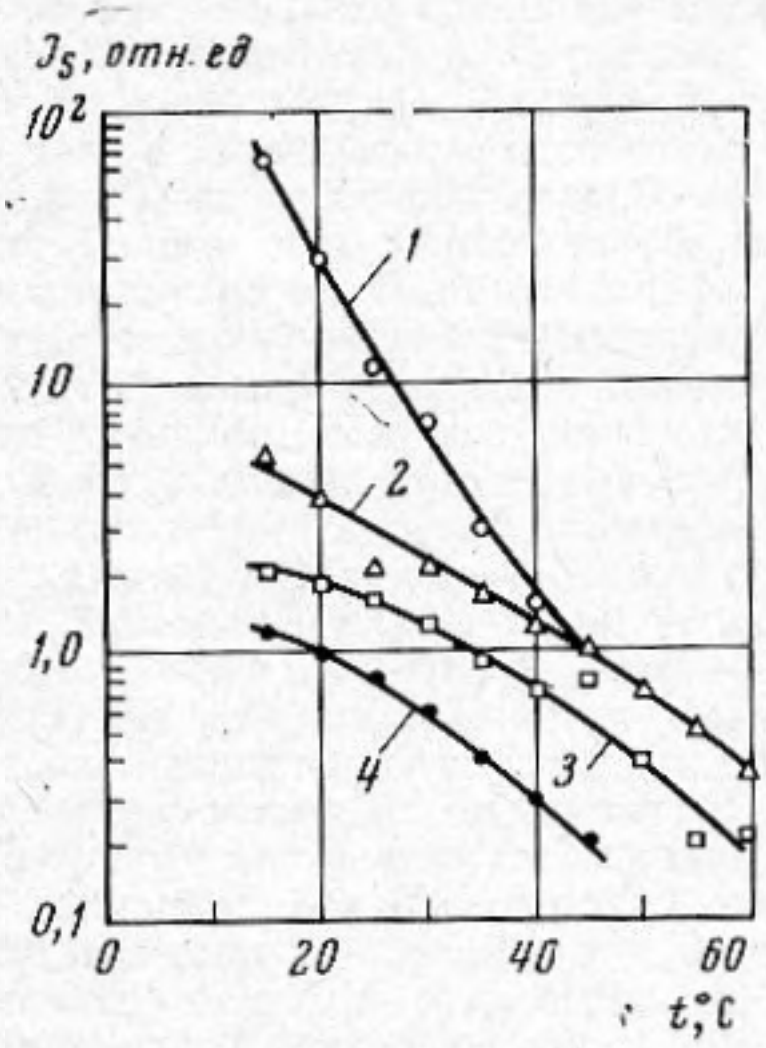
П. И. Голубничий, В. Д. Гончаров, Х. В. Протопопов

Свечение, возникающее в жидкостях при ультразвуковой кавитации, называется сонолюминесценцией. Было показано [1, 2], что интенсивность ее сильно зависит от физических свойств жидкости и возрастает с увеличением таких ее параметров, как $\Delta\varepsilon$, α^2/p, $1/\beta$, η, где α — поверхностное натяжение, p — давление насыщенных паров, $\Delta\varepsilon$ — свободная энергия межмолекулярного взаимодействия, β — адиабатическая сжимаемость, η — вязкость. Однако до сих пор не установилось единого мнения, какое же из свойств жидкости оказывает превалирующее влияние на ее способность к ультразвуковому свечению. Водные растворы сахарозы и глицерина являются очень удобными для такого рода исследований, так как при изменении состава и температуры указанных растворов весьма сильно изменяется их вязкость, давление насыщенных паров, адиабатическая сжимаемость и потому имеется возможность изучить влияние плавного изменения этих свойств как на интенсивность сонолюминесценции, так и на амплитуду вспышек сонолюминесценции (соновспышек). Уже были предприняты попытки исследовать с такой целью водные растворы глицерина. Однако полученные данные весьма противоречивы.

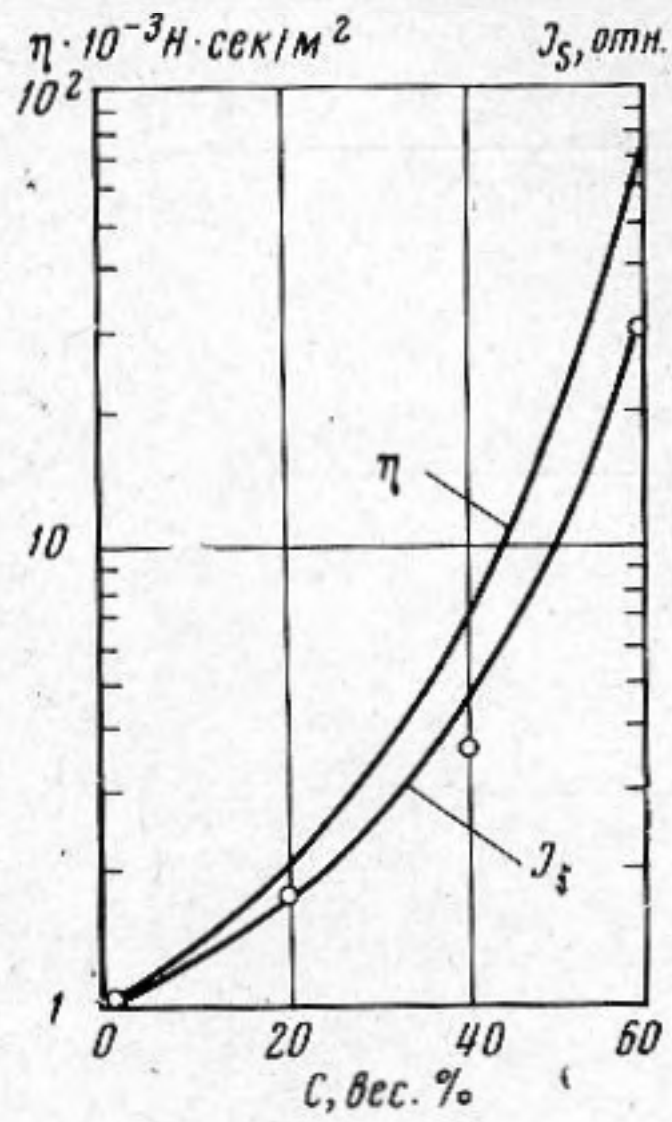
Янг [3], например, обнаружил, что интенсивность сонолюминесценции возрастает с увеличением содержания глицерина в растворе и указал на корреляцию с вязкостью. Джермен [1], однако, в свободном от воды глицерине вообще не смог возбудить свечение, в то время как в техническом глицерине, содержащем до 2% воды, оно оказывалось весьма значительным.

Все вышесказанное и предопределило выбор систем сахароза — вода, глицерин — вода в качестве объектов исследования. Измерения проведены с помощью экспериментальной установки, описанной в работе [4]. Измеряемыми величинами были полная интенсивность свечения I_s, получаемая в стационарном режиме, и максимальная амплитуда соновспышек A, определяемая по краю амплитудного спектра [5]. При этом предварительными опытами для стационарного режима было установлено подобие формы амплитудных спектров вспышек для различных жидкостей и растворов. Это означало пропорциональность величины A средней амплитуде соновспышек.

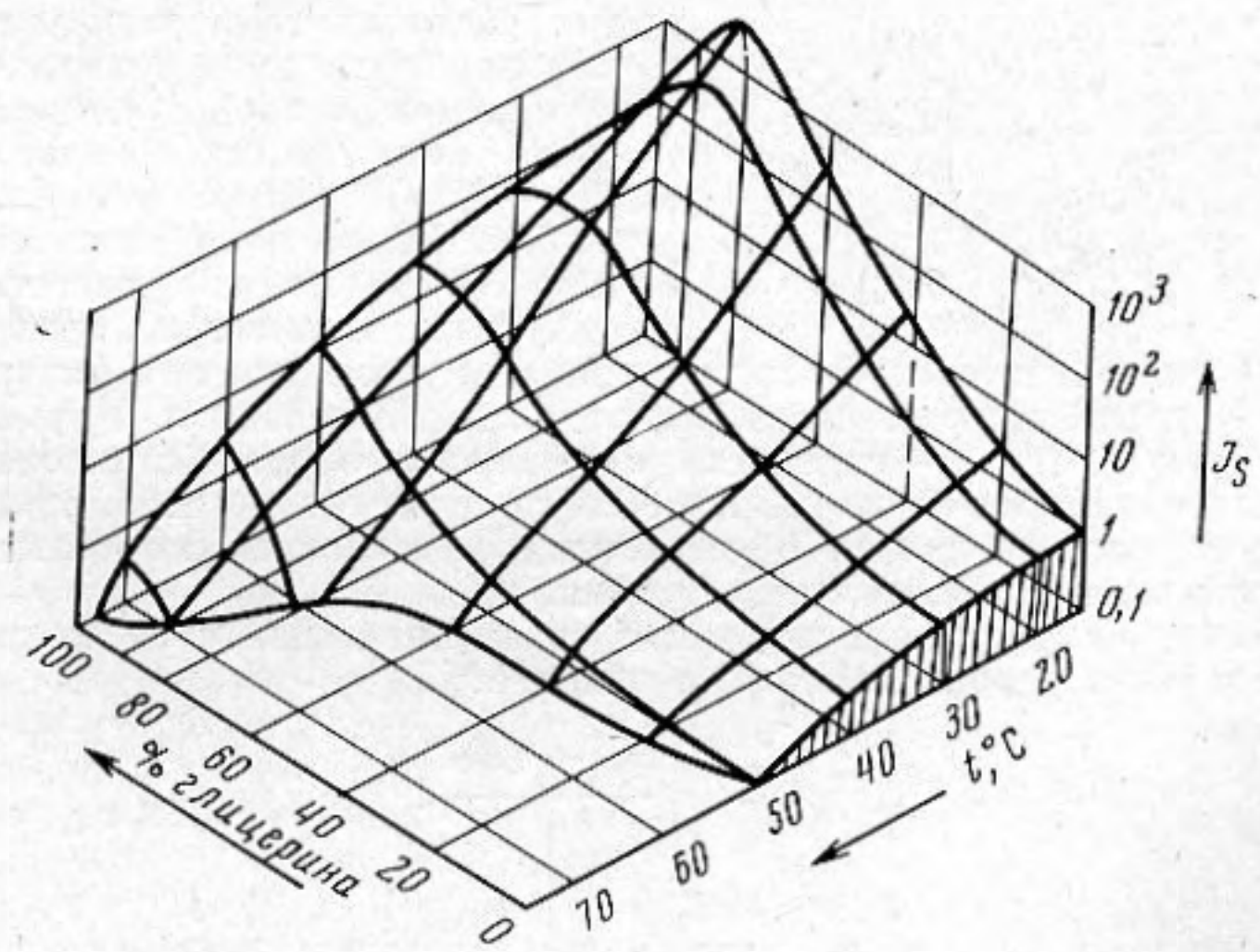
На фиг. 1 показан характер изменения интенсивности сонолюминесценции I_s с температурой для разных концентраций сахарозы в воде (*1* — 60, *2* — 40, *3* — 20, *4* — 0%). Легко показать, что при температурах ниже 30° изменение I_s полностью коррелирует с изменением вязкости η (см., например, фиг. 2, демонстрирующую эту корреляцию при температуре ~20°). При высоких температурах все увеличивающееся



Фиг. 1



Фиг. 2



Фиг. 3

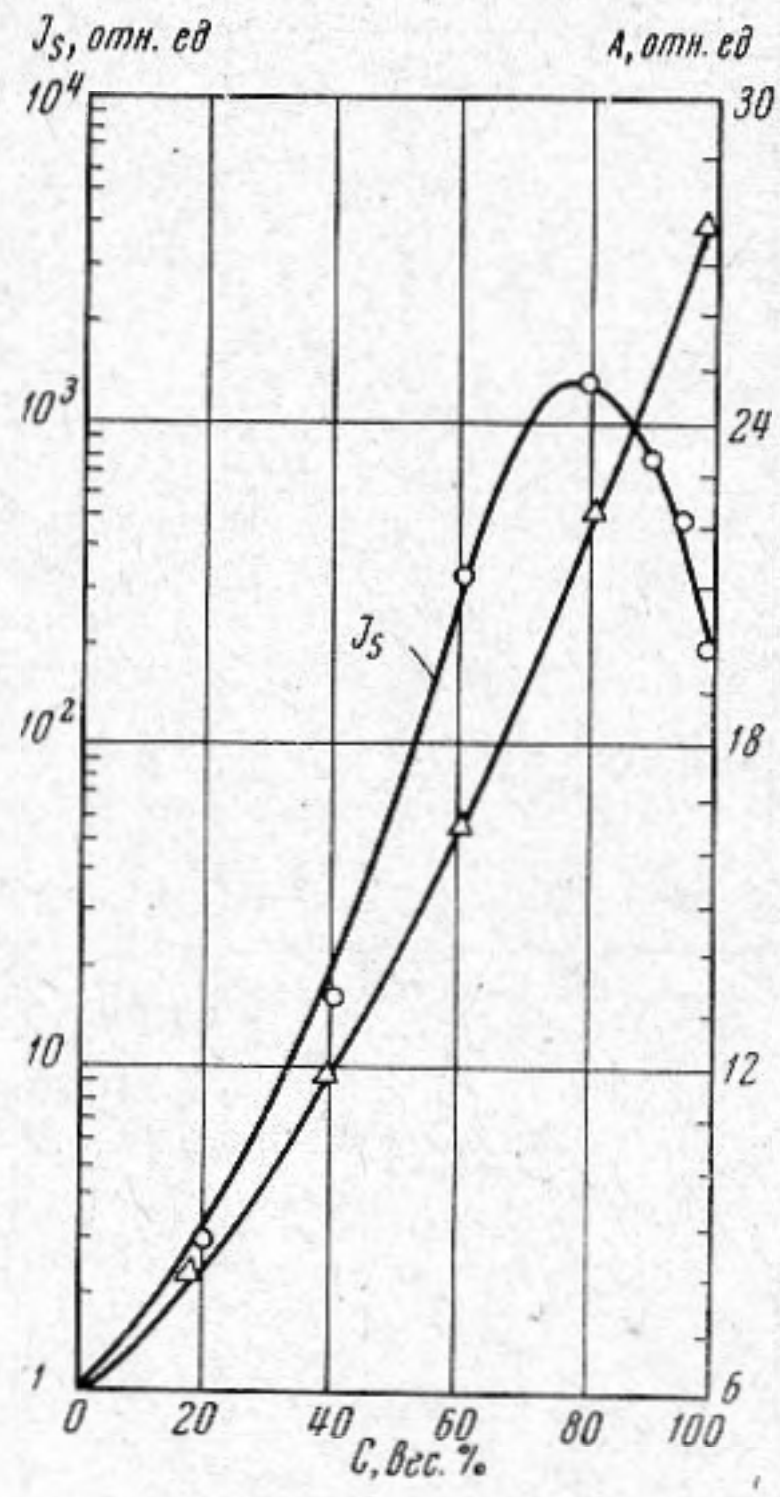
давление паров оказывает гасящее влияние на процессы, ответственные за сонолюминесценцию жидкостей. При этом роль параметров, влияющих на динамику кавитации (таких как поверхностное натяжение или вязкость) становится незначительной.

Результаты несколько иного характера получены при изучении сонолюминесценции водно-глицериновых смесей (фиг. 3). Особенность заключается в появлении максимума в концентрационной зависимости интенсивности свечения при фиксированной температуре. Величина этого максимума уменьшается с увеличением температуры. Несмотря на то, что в концентрационной зависимости интенсивности сонолюминесценции имеется максимум, амплитуда соновспышек плавно возрастает при увеличении концентрации глицерина (см. фиг. 4, соответствующую температуре 20°). Обращает внимание различающаяся приблизительно на два порядка интенсивность сонолюминесценции I_s в глицерине и воде.

Данные же других авторов о соотношении интенсивности сонолюминесценции в этих жидкостях тоже весьма противоречивы. Одной из причин этого несоответствия

может быть разное значение первоначальной концентрации кавитационных зародышей C, тем более, что этот параметр очень чувствителен (особенно для вязких сред типа глицерина) к предыдущей обработке жидкости (взбалтывание, фильтрование, способ заливки и т. п.).

Другой причиной (и, по-видимому, наиболее вероятной) является разная степень обезвоженности применявшегося в работах [1, 3] и настоящей работе глицерина (в нашем случае содержащиеся в глицерине следы воды удалялись отгонкой при 150°). Наличие максимума в концентрационной зависимости I_s (фиг. 3, 4) указывает, в частности, на то, что вода в глицерине может специфическим образом способствовать усилению свечения. Более резкий ход кривой для интенсивности свечения I_s по сравнению с амплитудной кривой говорит о том, что увеличение I_s происходит вследствие появления новых светящихся центров, максимальное количество которых достигается приблизительно при 20% концентрации воды. И действительно, после озвучивания водно-глицериновых смесей в растворе визуально наблюдается множество мельчайших пузырьков, число которых максимально при этой концентрации. Резкий спад I_s при концентрациях воды меньших 20%, может указывать на то, что в случае абсолютированного глицерина в нем трудно будет возбудить свечение. Такой результат, как уже упоминалось выше, был получен Джерменом [1]. Интересно, что авторами работы [6] при том же самом составе водно-глицериновой смеси были обнаружены максимум поглощения и максимумы скорости распространения ультразвука, высоты которых увеличиваются при возрастании температуры растворов. Было высказано предположение, что максимумы в поглощении и скорости появляются в результате образования комплекса $(CH_2OH-CHOH-CH_2OH)_4 \cdot H_2O$, возникновению которого благоприятствует повышение температуры [6]. В самом деле, известно, что любые структурные изменения, приводящие к замене части межмолекулярных связей внутримолекулярными или внутрикомплексными приводят к увеличению скорости звука, а следовательно и к уменьшению сжимаемости $\beta = 1/\rho c^2$, где ρ — плотность, c — скорость звука. Если полагать, что указанный комплекс действительно образуется, то снижение адиабатической сжимаемости при этом процессе может обуславливать появление максимума в концентрационной зависимости интенсивности свечения.



Фиг. 4

Эмпирическая формула, описывающая связь интенсивности сонолюминесценции и сжимаемости раствора, оказывается следующей:

$$\lg \frac{I_s}{I_0} = \frac{1/\beta - 1/\beta_0}{1/\beta_0},$$

где β_0 — сжимаемость воды, β — сжимаемость раствора, I_s — интенсивность сонолюминесценции в растворе, I_0 — интенсивность сонолюминесценции в воде. Формула справедлива во всем диапазоне концентраций при температуре больше 30°.

Полезно напомнить, что на величину вспышки оказывает влияние как состав содержимого захлопывающейся полости, т. е. соотношение парциальных давлений пара и газа, так и прочностные свойства жидкости, определяющие динамику кавитации. Поэтому при более низких температурах, когда давление паров мало и сжимаемость во многом определяет интенсивность вспышки, найденная выше зависимость становится более сильной, и максимум интенсивности сонолюминесценции становится более резко выраженным.

Полученное при повышении температуры сглаживание максимума, по-видимому, есть результат следующих двух конкурирующих процессов:

1. Увеличения числа кавитирующих центров, т. е. интенсивности свечения I_s вследствие уменьшения сжимаемости (при образовании упомянутого выше комплекса).

2. Уменьшения амплитуды соновспышек при возрастании давления насыщенных паров. Этот эффект в реальных условиях измерений (наличие определенного порога дискриминации) приводит к резкому снижению I_s.

Итак, несмотря на кажущееся различие в поведении концентрационно-температурных зависимостей интенсивности сонолюминесценции обеих исследованных систем, можно видеть и некоторые общие черты. При низких температурах (до 30°) структурные свойства жидкости η и β оказывают существенное влияние на интенсивность сонолюминесценции. При повышении температуры все большую роль начинает играть возрастающее давление паров, приводящее к тушению свечения. Сонолюминесценция практически не возникает при температурах выше 65°.

В заключение авторы выражают признательность А. Н. Лукину и В. Н. Филимоненко за ценные обсуждения и практические советы, а также благодарят Г. Т. Шепель и Г. А. Савинова за помощь в проведении опытов.

ЛИТЕРАТУРА

1. P. Jarman. Measurements of sonoluminescence from pure liquids and some aqueous. Proc. Phys. Soc., 1959, **13**, 628.
2. П. И. Голубничий, В. Д. Гончаров, Х. В. Протопопов. Сонолюминесценция в жидкостях. I. Влияние физических свойств чистых жидкостей. Препринт ИЯФ СО АН СССР, № 188, Новосибирск, 1968.
3. F. Young. Sonoluminescence from glycerine — water mixtures. Nature, 1965, **206**, 706.
4. П. И. Голубничий, В. Д. Гончаров, А. Н. Лукин, Х. В. Протопопов. Аппаратура для исследования электролюминесценции и сонолюминесценции жидкостей. ПТЭ, 1969, № 4, 220.
5. В. О. Вяземский, И. И. Ломоносов, А. Н. Писаревский, Х. В. Протопопов, В. А. Рузин, Е. Д. Тетерин. Сцинтилляционный метод в радиометрии. М., Госатомиздат, 1961.
6. G. S. Darbari, R. P. Singh, G. S. Verme. Temperature dependence of ultrasonic absorbtion in mixtures of glycerol and water. Nuovo Cim., 1966, **41B**, 15.

Институт ядерной физики
СО АН СССР
Новосибирск

Поступило в редакцию
12 сентября 1968 г.

УДК 534.8.081.7

К ВОПРОСУ ОБ АКУСТИЧЕСКИХ СВОЙСТВАХ АЗЕОТРОПНЫХ СМЕСЕЙ

В. И. Гречкин, *Г. И. Новиков*, *В. Ф. Ноздрев*

Согласно существующим представлениям, образование положительных азеотропов в растворе обусловлено значительным уменьшением сил взаимодействия между разнородными молекулами при азеотропном составе по сравнению с силами взаимодействия между одинаковыми молекулами в компонентах смеси [1, 2].

Поэтому естественно ожидать, что указанные изменения в силах межмолекулярного взаимодействия должны найти в той или иной мере свое отражение в характере поведения различных физико-химических свойств растворов в зависимости от их состава.

С целью выяснения корреляции в поведении физико-химических свойств азеотропных растворов с особенностями межмолекулярного взаимодействия в них, мы провели исследования акустических характеристик, плотности, сдвиговой вязкости и фазовых равновесий в системе изопропанол — циклогексан в широком интервале температур, давлений и концентраций, включая критическую область жидкость — пар.

Акустические параметры системы определялись оптическим дифракционным методом, сдвиговая вязкость измерялась капиллярным вискозиметром, а составы равновесных фаз — методом отбора и анализа проб [3, 4, 5]. Физико-химические константы индивидуальных жидкостей, из которых составлялись смеси, имели значения, близкие к табличным.

Максимально возможная ошибка эксперимента, по нашим оценкам, составляла для средних температур 120—150° при определении скорости распространения ультразвука — 0,6—0,8%, плотности — 0,8—1,0%, вязкости — около 2% и состава фаз — 1,0—1,2%.

На фиг. 1 приводятся полученные нами изотермы скорости распространения ультразвука в жидкой фазе системы изопропанол — циклогексан в зависимости от весового процентного содержания спирта в условиях равновесия с насыщенным паром. Кривые на фигуре отвечают следующим значениям температуры: *1* — 20, *2* — 40, *3* — 60, *4* — 80, *5* — 100, *6* — 120, *7* — 140, *8* — 160, *9* — 180, *10* — 200, *11* — 220, *12* — 230°.