

существенной скорости. Последнее связано с тем, что рассматриваются малые деформации скелета порошка ( $\alpha_{1p} - \alpha_{1b} \ll 1$ ).

Данные выполненного численного исследования свидетельствуют, что при начальном межгранулярном давлении частиц ( $p_p$ ), сравнимом по величине с давлением порового газа ( $p$ ), его влияние на параметры воздушных УВ незначительное и при практических расчетах им можно пренебречь.

Автор выражает признательность В. В. Мальцеву за помощь в проведении численных расчетов.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Медведев С. П., Поленов А. Н., Гельфанд Б. Е. и др. Воздушные УВ при внезапном расширении сжатой двухфазной среды насыпной плотности // Физика горения и взрыва. 1987. Т.23. № 3. С. 135-139.
2. Кутушев А. Г., Рудаков Д. А. Численное исследование параметров воздушных УВ при разлете расширяющегося слоя порошкообразной среды // Физика горения и взрыва. 1992. Т.28. № 6. С. 105-112.
3. Ахатов И. Ш., Вайнштейн П. Б. Переход горения пористых ВВ в детонацию // Физика горения и взрыва. 1984. Т.20. № 5. С. 8-14.
4. Нигматулин Р. И. Динамика многофазных сред. Ч.1. М., 1987.
5. Gough P. S., Zwartst F. J. Modeling heterogeneous two-phase reacting flow // AIAA J. 1979. V.17. №1. P. 17-25.
6. Белоцерковский О. М., Давыдов Ю. М. Метод крупных частиц в газовой динамике. М., 1982.
7. Кутушев А. Г., Рудаков Д. А. Математическое моделирование динамического нагружения слоя пористой порошкообразной среды сжатым газом // Математическое моделирование. 1991. Т.3. № 11. С. 65-75.

*Людила Петровна СЕМИХИНА —  
доцент кафедры механики многофазных  
систем физического факультета,  
кандидат физико-математических наук*

УДК 546.212

### **РАЗРАБОТКА ИНДУКТИВНОГО МЕТОДА ИЗМЕРЕНИЯ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ ЖИДКОСТЕЙ**

*АННОТАЦИЯ. Разработан индуктивный метод измерения диэлектрических параметров объектов, с помощью которого в диапазоне частот 10кГц-10МГц в воде и ее растворах фиксируется низкочастотная дисперсия диэлектрической проницаемости и низкочастотный максимум диэлектрических потерь.*

*The inductive method for dielectric property of liquid investigation was developed with the help of which in water and its solutions the low-frequency permittivity dispersion and the low-frequency maximum for angle tangent of dielectric losses ( $tg\delta$ ) at a frequency range 10kHz – 40MHz is observed.*

В последние годы резко возрос интерес к физике кластеров, в том числе и к кластерам воды, из-за их важной роли в различных природных явлениях [1-4]. В [5] предсказано существование в воде кластеров из  $10^6$  молекул, которые в диапазоне частот  $10^4$ - $10^6$  Гц должны увеличивать диэлектрическую проницаемость  $\epsilon$  воды в 10 раз по сравнению с известным значением. Однако существование даже малых кластеров в

жидкой воде не согласуется с известными на данный момент ее диэлектрическими свойствами [6]. Попытки выявления в воде низкочастотной дисперсии  $\epsilon$  с помощью емкостных измерительных ячеек не выдерживают критики [7-8].

В этом плане особый интерес приобретает обнаружение с помощью индуктивного метода низкочастотного максимума тангенса угла диэлектрических потерь ( $\text{tg}\delta$ ) в воде [9-12]. С целью выяснения возможности регистрации этим методом не только  $\text{tg}\delta$ , но и низкочастотной дисперсии  $\epsilon$ , рассмотрим более досконально суть индуктивного диэлектрического метода (L-метода).

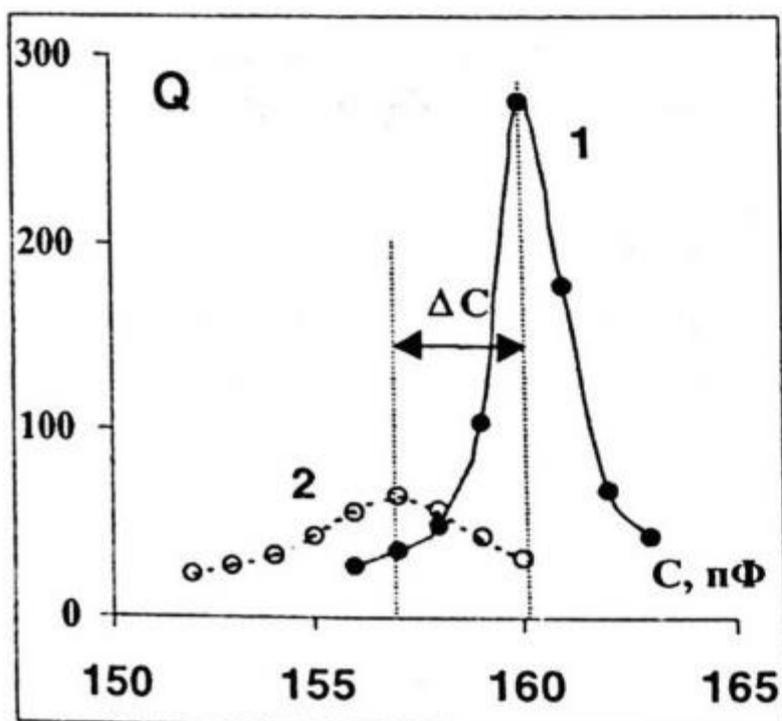


Рис. 1. Резонансные кривые колебательного контура куметра до (1) и после (2) введения сосуда с водой в L-ячейку

В отличие от общеизвестного емкостного С-метода с конденсаторной измерительной ячейкой, в L-методе исследуемый объект помещается в соленоидальную катушку индуктивности (L-ячейку). Как видно на рис. 1, после внесения водного раствора в диэлектрическом сосуде внутри L-ячейки, подключенной к колебательному контуру куметра, на величину  $\Delta C$  изменяется емкость калиброванного конденсатора, при котором достигается резонанс в контуре, а также существенно уменьшается добротность  $Q$  при резонансе (Эффект от внесения пустого сухого сосуда, например стеклянной пробирки, пренебрежимо мал).

Попытки использования данного явления для определения диэлектрических параметров жидкостей не увенчались успехом. В монографиях [13-14], в которых

дается обзор последних достижений в области диэлькометрии, индуктивный метод даже не упоминается. Индуктивные L-ячейки используются лишь как способ бесконтактной кондуктометрии (см. обзоры [15-19]). Но, несмотря на полувековую историю такого применения L-ячеек, даже принцип их работы остается спорным. Согласно гипотезе о «емкостном» механизме, L-ячейка работает за счет изменения межвитковой емкости катушки при внесении в нее жидкости. Обмотка катушки при этом выполняет функцию внешних электродов подобно электродам обычной емкостной С-ячейки [17]. По «магнитному» механизму работа L-ячеек связывается с эффективной магнитной проницаемостью жидкости [20]. Большинство авторов предполагают «индуктивный» принцип работы L-ячеек, обусловленный возникновением в исследуемой жидкости вихревых токов. Однако при используемом в данной работе способе ввода жидкости в L-ячейку, при котором жидкость удалена от обмотки катушки примерно на 4-6 мм, емкостным механизмом можно пренебречь, магнитный механизм работает лишь для магнитных жидкостей, а эффект от вихревых токов противоположен по знаку наблюдаемому в эксперименте изменениям индуктивности. Т.о. все предложенные ранее в литературе гипотезы не пригодны для объяснения даже принципа изменений параметров L-ячейки, представленных на рис. 1.

Причиной сложившейся ситуации является пренебрежение токами смещения в рассматриваемой задаче. Между тем из уравнений Максвелла для бесконечно длинной цилиндрической ячейки в переменном магнитном поле  $B_0 \exp(i\omega t)$ , заполненной жидкостью с магнитной проницаемостью  $\mu$ , диэлектрической проницаемостью  $\epsilon$  и удельной электропроводностью  $\chi$ , находятся выражения для амплитудного значения магнитной индукции и магнитного потока и в общем случае:

$$B = B_0 J_0(ar) / J_0(ar_0); \quad \Phi = 2\Phi_0 J_1(ar_0) / ar_0 J_0(ar_0),$$

где  $a^2 = \mu\omega(\varepsilon\omega - i\chi)$ ,  $J_0(ar)$ ,  $J_1(ar)$  — функции Бесселя,  $r_0$  — радиус пробы жидкости,  $\Phi_0 = B_0 \pi r_0^2$ . После разложения функций Бесселя в ряд и избавления от комплексных величин оказывается, что изменение магнитного потока внутри ячейки после помещения в нее жидкости преимущественно определяется лишь двумя слагаемыми, связанными с возникновением в жидкости токов смещения и вихревых токов.

$$\Delta\Phi = \Phi_0 \left( \frac{1}{8} r_0^2 \mu \varepsilon \omega^2 - \frac{5}{384} r_0^4 \mu^2 \omega^2 \chi^2 \right) = \Delta\Phi_{\text{смещ.}} - \Delta\Phi_{\text{вихр.}} \quad (1)$$

Вклад от вихревых токов определяется электропроводностью жидкости и им можно пренебречь для водных растворов, для которых  $\chi < \chi_{\text{пред.}}$ , где  $\chi_{\text{пред.}}$  оценивается из соотношения

$$\Delta\Phi_{\text{вихр.}} / \Delta\Phi_{\text{смещ.}} = 5r_0^2 \mu \chi^2 / 48\varepsilon < 0,05. \quad (2)$$

Отметим, что при  $r_0 = 1,5$  см, величина  $\beta$  чистой воды порядка  $10^9$ , а найденное из (2)  $\chi_{\text{пред.}} = 10$  мСм/см. Для растворов с  $\chi < \chi_{\text{пред.}}$  из условия резонанса контура и соотношения  $\Delta L / L_0 = \Delta\Phi_{\text{смещ.}} / \Phi_0$  получаем

$$\Delta C = \mu \varepsilon r_0^2 / 8L_0 = \frac{\pi l E_{\text{max}}^2}{2U^2 Q_1^2} \cdot \varepsilon r_0^2 = \alpha \varepsilon S_0, \quad (3)$$

где  $\alpha = l E_{\text{max}}^2 / 2(UQ_1)^2$  — есть постоянная измерительной ячейки;  $E_{\text{max}} = \omega B_0 r / 2$  — максимальная напряженность вихревого электрического поля внутри L-ячейки радиусом  $r$ ,  $U$  — напряжение, подаваемое на вход колебательного контура и не меняющееся во время измерений,  $l$  — длина L-ячейки,  $S_0$  — площадь сечения пробы жидкости, помещаемой в ячейку. Из (3) следует, что при постоянной  $S_0$  величина  $\Delta C$  для данной ячейки должна линейно зависеть от диэлектрической проницаемости жидкости  $\varepsilon$ , что подтверждают данные, представленные в таб. 1.

Таблица 1

Жидкость	$\Delta C$ (пФ) на 3МГц	$\varepsilon$ [21]	$\varepsilon / \Delta C$
ксилол	0,13	2,37	18,2
хлороформ	0,28	4,72	16,9
циклогексанол	0,97	16,8	17,3
ацетон	1,17	20,7	17,7
			$17,5 \pm 0,3$

Поскольку величина  $\Delta C$  контура после помещения жидкости в L-ячейку определяется значением  $\varepsilon$  жидкости, то снижение добротности контура должно зависеть от ее диэлектрических потерь. В таком случае отношение изменения активного  $\Delta R$  и индуктивного  $\omega\Delta L$  сопротивления измерительной L-ячейки определяет величину тангенса угла диэлектрических потерь жидкости:  $\text{tg}\delta = \Delta R / \omega\Delta L$ . Значения  $\Delta R$  и  $\omega\Delta L$  для L-ячейки с собственной емкостью  $C_0$  можно найти из соотношений:

$$L_0 = 1 / \omega^2 (C_1 + C_0) \quad (4)$$

$$L_0 + \Delta L = 1 / \omega^2 (C_2 + C_0) \quad (5)$$

$$Q_1 = \omega L_0 / R_0 = Q_{f1} (1 + C_0 / C_1) \quad (6)$$

$$Q_2 = \omega (L_0 + \Delta L) / (R_0 + \Delta R) = Q_{f2} (1 + C_0 / C_2), \quad (7)$$

где  $R_0$  и  $\omega L_0$  — активное и индуктивное сопротивление контура до введения жидкости,  $C_1, C_2$ ;  $Q_1, Q_2$  — значения емкости калиброванного конденсатора и добротности контура при резонансе до и после введения жидкости в L-ячейку. Добротности контура  $Q_1, Q_2$  соотношениями (6,7) связаны со значениями  $Q_{f1}, Q_{f2}$  — так называемыми множителями вольтажа колебательного контура, отсчитываемыми при резонансе по шкале вольтметра, измеряющего напряжение на калиброванном конденсаторе куметра. Из (4-7) получаем

$$\operatorname{tg} \delta = \frac{C_1 Q_{f1} (1 + C_0 / C_1)^2 - C_2 Q_{f2} (1 + C_0 / C_2)^2}{(C_1 - C_2) Q_{f1} Q_{f2} (1 + C_0 / C_1) (1 + C_0 / C_2)} \quad (8)$$

При  $C_0=0$ , когда  $Q_{1,2} = Q_{f1,2}$ , выражение (8) упрощается и имеет вид:

$$\operatorname{tg} \delta = (Q_1 C_1 - Q_2 C_2) / Q_1 Q_2 (C_1 - C_2) \quad (9)$$

В результате расчетов по (8) и (9) значений  $\operatorname{tg} \delta$  различных водных растворов даже для ячеек с максимальной  $C_0=10$  пФ было обнаружено совпадение полученных данных с точностью выше ошибки эксперимента. Учитывая возможность 20%–30% различия числителя и знаменателя выражений (8) и (9), данный факт оказывается несколько неожиданным. Однако он лишь указывает на пренебрежимо малую роль емкостного принципа в используемых ячейках и обосновывает применимость для расчета  $\operatorname{tg} \delta$  соотношения (9), использованного ранее в [9-12]. Приведенные в таб. 2 данные, полученные на одной частоте на трех измерительных L-ячейках одинакового размера, но с разной индуктивностью и собственной емкостью, подтверждают вышесказанное, а также демонстрируют точность эксперимента и независимость значений  $\operatorname{tg} \delta$  и  $\Delta C$  жидкости от индуктивности L-ячейки.

Таблица 2

Бидистиллированная вода, частота 100кГц, радиус пробы 1 см								
L мГн	$C_0$ (нФ)	$Q_1$	$C_1$ (нФ)	$Q_2$	$C_2$ (нФ)	$\Delta C$ (нФ) = ( $C_1 - C_2$ )	$\operatorname{tg} \delta \cdot 10^2$ по (8)	$\operatorname{tg} \delta \cdot 10^2$ по (9)
33	10	148	55,1	80	53,3	1,80	18,2	18,5
11,6	8	176	174,5	134	172,7	1,80	17,8	17,8
4,3	6	162	545,6	148	543,8	1,80	18,3	18,3
среднее						$1,80 \pm 0,05$	$18 \pm 1$	$18 \pm 1$

Обнаруженная независимость значений  $\Delta C$  от индуктивности L-ячейки объясняется на основании соотношения (2), согласно которому постоянная ячейки определяется величиной поля  $E_{\max}$  внутри ее. Как было обнаружено, имеется своеобразный эффект насыщения, благодаря которому значения  $\operatorname{tg} \delta$  и  $\Delta C$  объектов с  $\chi < \chi_{\text{пред}}$  постоянны при изменении  $E_{\max}$  в достаточно широком интервале

$$5 \text{ мкВ/см} < E_{\max} < 200 \text{ мкВ/см} \quad (10)$$

Независимость  $\operatorname{tg} \delta$  и  $\Delta C$  объектов от индуктивности измерительных ячеек есть следствие данного эффекта и наблюдается лишь при условии (10). Именно благодаря данному эффекту, появляется возможность исследования частотной зависимости  $\operatorname{tg} \delta$  и  $\Delta C$  объектов в широком диапазоне частот, поскольку с каждой измерительной ячейкой условие резонанса (4) фиксируется лишь в узком диапазоне частот.

Оптимальные размеры измерительных L-ячеек выявляются из данных, представленных на рис. 2-3. Как видим на рис. 2, уменьшение сечения пробы жидкости приводит к снижению чувствительности способа. Оптимальный размер радиуса пробы в предлагаемом способе составляет примерно 15мм, т.о. оптимальный радиус обмотки измерительной L-ячейки примерно 20мм. Дальнейшее увеличение  $r$  приводит к увеличению сопротивления L-ячейки и снижению поля внутри ее ниже  $E_{\max}$  на низких частотах.

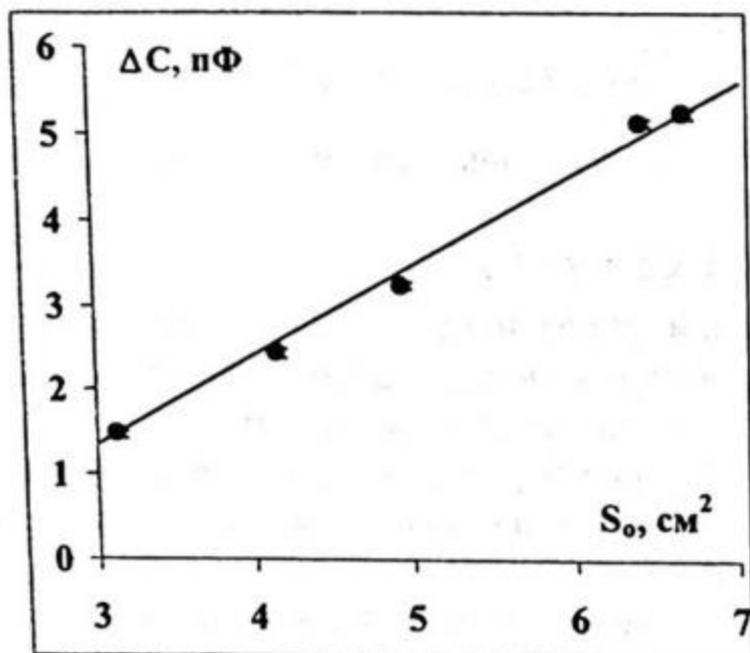


Рис.2. Зависимость  $\Delta C$  от сечения пробы жидкости на примере чистой воды на частоте 25кГц

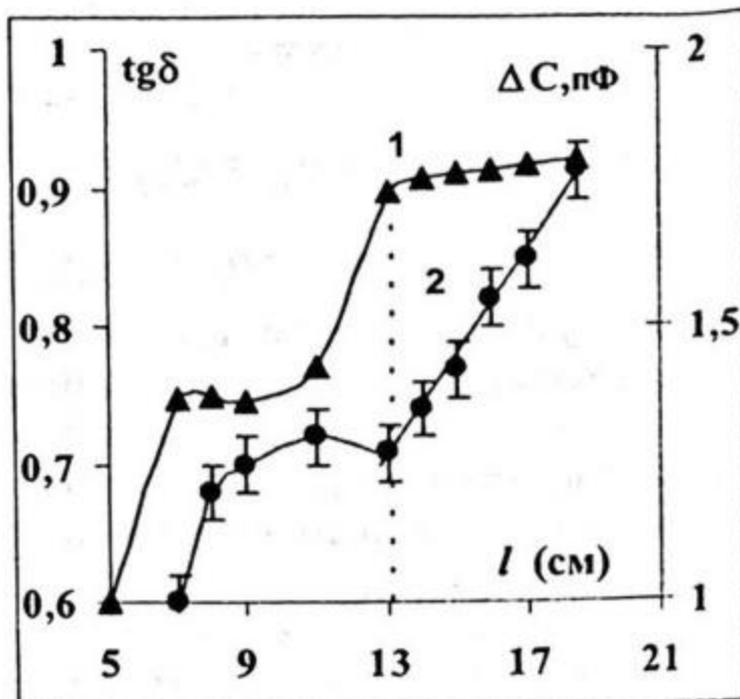


Рис.3. Влияние длины обмотки L-ячейки на величину  $\text{tg}\delta$  (1) и  $\Delta C$  (2) исследуемого объекта

Влияние длины обмотки  $l$  соленоидальной измерительной катушки индуктивности на полученные с ее помощью значения  $\text{tg}\delta$  и  $\Delta C$  исследуемого объекта показано на рис. 3 для L-ячейки с  $r = 19\text{мм}$ . Как видим, при длине катушки  $l > l_0$ , где  $l_0$  — некоторое критическое значение длины катушки, отмеченное на рис. 3 пунктиром, величина  $\text{tg}\delta$  исследуемого объекта практически не зависит от  $l$ , а между  $\Delta C$  и  $l$  наблюдается четкая линейная зависимость, подтверждающая соотношение (3). Очевидно, что для практических измерений пригодны лишь ячейки с  $l > l_0$ . Критической длине катушки  $l_0$  соответствует условие

$$l_0/r \approx 7. \quad (11)$$

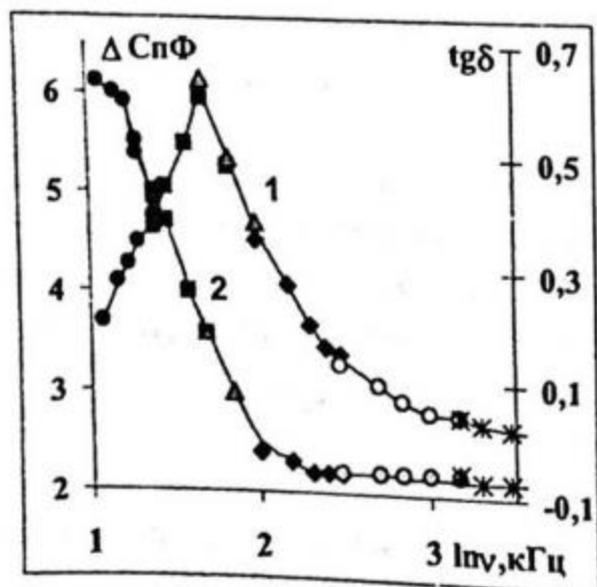


Рис. 4. Частотные зависимости  $\text{tg}\delta$ (1) и  $\Delta C$ (2) для воды с  $\sigma = 3,6\text{мкСм/см}$ , полученные с помощью 6 L-ячеек

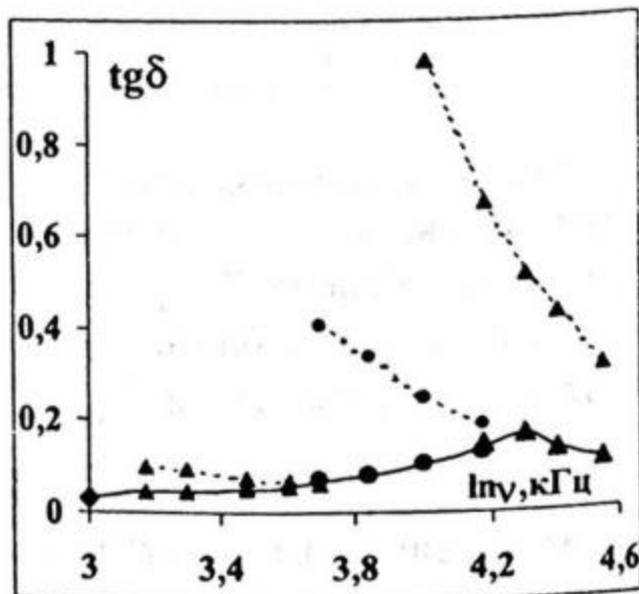


Рис. 5. Частотные зависимости  $\text{tg}\delta$  водных растворов NaCl с  $\chi = 4\text{мСм/см} < \chi_{\text{пред}}$  (сплошные линии) и  $\chi = 15\text{мСм/см} > \chi_{\text{пред}}$  (пунктир), измеренные на разных ячейках

Оно совпадает с условием, при котором магнитное поле внутри соленоида можно считать равным полю бесконечно длинного соленоида. В катушках, удовлетворяющих условию (11), возрастает область однородного магнитного поля. На необходимость высокой однородности магнитного поля внутри измерительной ячейки указывает также то, что при неравномерной обмотке L-ячейки значения  $tg\delta$ , найденные с ее помощью, заметно снижаются, даже если ее длина удовлетворяет (11).

Во избежание артефактов при измерении частотных зависимостей  $tg\delta$  и  $\Delta C$  объектов измерительные L-ячейки должны изготавливаться с перекрывающимся частотным диапазоном, причем различие значений  $tg\delta$  и  $\Delta C$  объекта, полученных на двух измерительных ячейках, должно быть близко к точности эксперимента. Приведенный на рис. 4 пример демонстрирует, что для использованного в данной работе комплекта L-ячеек это требование хорошо выполняется.

Индикатором того, что объект имеет удельную электропроводность  $\chi > \chi_{пред}$ . и предложенный способ для его исследования не пригоден из-за увеличения вклада вихревых токов, является возникновение существенных различий между значениями  $tg\delta$ , найденными с помощью L-ячеек разной индуктивности (рис. 5). Полученная из эксперимента оценка величины  $\chi_{пред}$  совпадает с ее теоретическим значением, рассчитанным из (2).

Как видно на рис. 4, в диапазоне частот 12кГц – 10МГц величина  $\Delta C$  воды уменьшается примерно в 3 раза, что, в соответствии с вышесказанным, указывает на снижение во столько же раз ее диэлектрической проницаемости. Причем в области дисперсии  $\epsilon$  наблюдается максимум  $tg\delta$ . Обратим внимание, что величины  $\epsilon$  и  $tg\delta$  находятся по изменению разных параметров колебательного контура. Поэтому наличие у воды в одном и том же диапазоне частот дисперсии  $\epsilon$  и низкочастотного максимума  $tg\delta$  взаимно подтверждает достоверность обоих явлений. Достоверность полученных данных подтверждается также совпадением частотных зависимостей  $tg\delta$ , полученных L- и C-способом для спиртов (рис. 6).

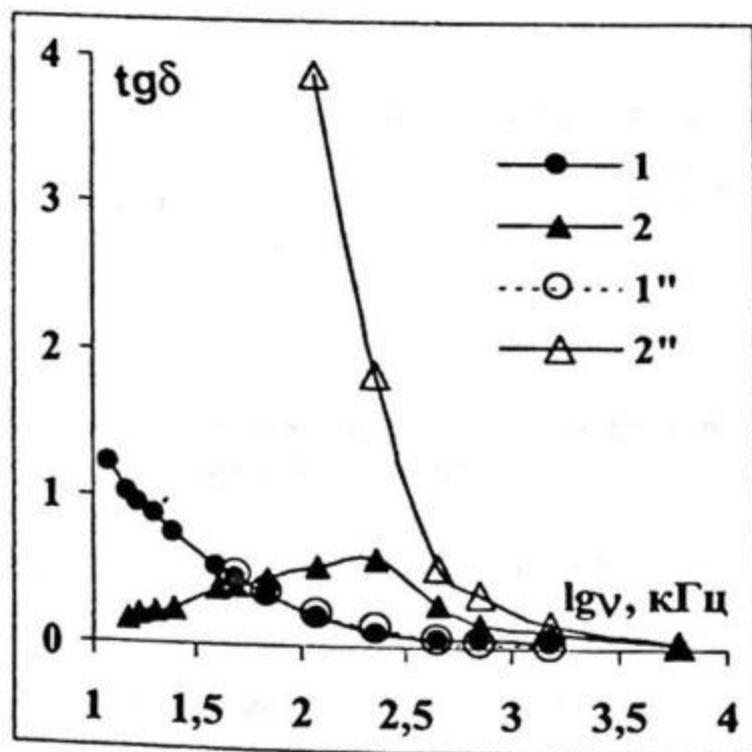


Рис. 6. Частотная зависимость  $tg\delta$  изопропанола (1,1'') и водного раствора NaCl (2,2''), полученная L- (1,2) и C-методом (1'',2'')

Для выяснения причины отсутствия рассмотренной низкочастотной дисперсии  $\epsilon$  и низкочастотного максимума  $tg\delta$  в общеизвестном C-способе, рассмотрим справедливое для C-способа соотношение для величины  $tg\delta$  проводящей жидкости [19]:

$$tg\delta = tg\delta_{ор.} + 2\chi / \nu\epsilon', \quad (12)$$

где первое слагаемое характеризует потери за счет ориентации диполей, а второе обусловлено токами проводимости. На частотах менее 1МГц, как известно, в C-способе преобладает вклад второго слагаемого, что и обуславливает наблюдаемое в эксперименте резкое увеличение  $tg\delta$  при понижении частоты измерения  $\nu$  (рис. 6). В случае L-способа, благодаря очень малой напряженности электрического поля в L-ячейке, заметной проводимости внутри жидкости не возбуждается. Например, в воде с  $\chi = 2\text{мкСм/см}$  и  $E_{max} = 5\text{мкВ/см}$  плотность тока равна всего 10-11А/см<sup>2</sup>,

что практически означает его отсутствие. Поэтому в случае L-способа отсутствует также и второе слагаемое в соотношении (12), что позволяет регистрировать величину  $tg\delta_{ор.}$  и исследовать ориентационные процессы в воде на низких частотах.

Представленные на рис. 6 экспериментальные данные можно интерпретировать и несколько иначе. Хорошее совпадение частотных зависимостей  $\text{tg}\delta$ , полученных L- и C-способом для спиртов, являющихся жидкостями без сплошной сетки водородных связей, а также то, что полученная C-способом зависимость  $\text{tg}\delta(\nu)$  для воды имеет вид, свойственный спиртам, указывают фактически на то, что вода внутри C-ячейки становится подобна спиртам. Следовательно, возникновение в воде токов проводимости приводит к разрушению сетки ее водородных связей. В таком случае емкостный диэлектрический метод в области частот менее 1 МГц нельзя считать методом не разрушающего контроля водных растворов.

Обнаруженная высокая чувствительность состояния воды к силовым воздействиям во время измерения ее диэлектрических параметров требует критического анализа и других ее физических свойств.

В заключение выражаю огромную благодарность профессору Эдуарду Абрамовичу Аринштейну за ценные замечания и помощь в разработке теоретических основ принципа работы L-ячейки.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Xantheas S. S. Cooperativity and hydrogen bonding network in water clusters // Chem. Phys. 2000. V. 258 P. 225-231.
2. Buck U., Huisken F. Infrared Spectroscopy of Size-Selected Water and Methanol Clusters // Chem. Rev. 2000. V. 100, №11.
3. Лахно В. Д. Кластеры в физике, химии, биологии. Ижевск, 2001. 256 с.
4. Дроздов С. В., Востриков А. А. Особенности строения и энергии малых кластеров воды // Письма в ЖТФ. 2000. Т. 26. Вып. 9. С. 81-85.
5. Пономарев О. А., Фесенко Е. Е. Свойства жидкой воды в электрических и магнитных полях // Биофизика. 2000. Т. 45. Вып. 3. С. 389-398.
6. Эйзенберг Д., Кауцман В. Структура и свойства воды. Л., 1975. 280 с.
7. Демиденко Н. М. Аномалия диэлектрической проницаемости воды в диапазоне частот  $2\pi (10^3 - 10^5)$  Гц // ЖФХ. 1999. Т. 73. № 6. С. 1107-1111.
8. Любимов Ю. А. К вопросу об измерении низкочастотной диэлектрической проницаемости воды // ЖФХ. 2001. Т. 75. № 7. С. 1340-1342.
9. Семихина Л. П. Исследование влияния слабых магнитных полей на физические свойства воды и льда: Автореф. дис. ... канд физ-мат. наук. МГУ, 1989.
10. Киселев В. Ф., Салецкий А. М., Семихина Л. П. Структурные изменения в воде после воздействия слабых переменных магнитных полей // Вестник МГУ. 1990. № 2. С. 53-58.
11. Семихина Л. П. Возможности диэлектрического метода для анализа состояния водных систем после физических воздействий // Вестник Тюменского государственного университета. 2000. № 3. С. 39-43.
12. Семихина Л. П. Анализ состояния воды в биологических объектах методом низкочастотной диэлькометрии // Сб. тр. 2-й Российской конф. «Физика в биологии и медицине». Екатеринбург, 2001. С. 72-73.
13. Потапов А. А. Молекулярная диэлькометрия. Новосибирск, 1994. 285 с.
14. Потапов А. А. Ориентационная поляризация. Новосибирск, 2000. 335 с.
15. Лопатин Б. А. Кондуктометрия. Новосибирск, 1964. 280 с.
16. Лопатин Б. А. Теоретические основы электрохимических методов анализа. М., 1975. 295 с.
17. Лопатин Б. А. Высокочастотное титрование с многозвенными ячейками. М., 1980. 207 с.
18. Заринский В. А. Высокочастотный химический анализ. М., 1970. 200 с.
19. Андреев В. С. Кондуктометрические методы и приборы в биологии и медицине. М., 1973. 336 с.
20. Farcas F., Klug O., Kovacs F., Gombos M. // Messtechnik. 1969. № 2. P. 46-51.
21. Ахадов Я. Ю. Диэлектрические свойства чистых жидкостей. М., 1972. 412 с.