

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук

На правах рукописи

**Макалкин Дмитрий Ильич**

**ДИНАМИКА МЕЖФАЗНЫХ ГРАНИЦ,  
СЕПАРИРОВАНИЕ И АБЛЯЦИЯ В ДВУХКОМПОНЕНТНЫХ  
КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕДАХ ПОД ДЕЙСТВИЕМ  
УЛЬТРАЗВУКА**

01.04.07 – физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:  
доктор физико-математических наук  
Брысов А.П.

Москва – 2019

## СОДЕРЖАНИЕ

<b>ВВЕДЕНИЕ .....</b>	5
<b>ГЛАВА 1. ОСОБЕННОСТИ ДИНАМИКИ ГРАНИЦЫ НЕСМЕШИВАЮЩИХСЯ МАЛОВЯЗКИХ ЖИДКОСТЕЙ, НАХОДЯЩИХСЯ В МАЛОМ ОБЪЕМЕ, ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ИМПУЛЬСНО-ПЕРИОДИЧЕСКОГО СФОКУСИРОВАННОГО УЛЬТРАЗВУКОВОГО ПУЧКА</b>	
Введение к главе 1. Воздействие ультразвука на границу стратифицированных сред (обзор).....	16
§1.1 Экспериментальная установка и методика эксперимента.....	20
§1.2 Ультразвуковое возбуждение низшей симметричной моды колебаний границы раздела жидкостей, заключенных в малый объем.....	26
1.2.1 Зависимость амплитуды колебаний низшей симметричной моды границы раздела от амплитуды и длительности импульсов ультразвука.....	26
1.2.2 Порог ультразвукового возбуждения низшей симметричной моды колебаний границы раздела для разных пар жидкостей.....	30
§1.3. Ультразвуковая эмиссия капель с границы раздела жидкостей.....	35
1.3.1 Контролируемая ультразвуком эмиссия одиночных капель одинаковых размеров.....	35
1.3.2 Стохастическая ультразвуковая эмиссия множественных капель	
Краткие выводы по результатам главы 1.....	42
<b>ГЛАВА 2. ИЗМЕРЕНИЕ МАЛЫХ ЗНАЧЕНИЙ КОЭФФИЦИЕНТА МЕЖФАЗНОГО НАТЯЖЕНИЯ С ПОМОЩЬЮ ВОЗБУЖДЕНИЯ КАПИЛЛЯРНЫХ ВОЛН ИМПУЛЬСОМ РАДИАЦИОННОГО ДАВЛЕНИЯ УЛЬТРАЗВУКА В УСЛОВИЯХ МИКРОГРАВИТАЦИИ</b>	
Введение к главе 2. Методы измерений коэффициента межфазного натяжения несмешивающихся и бинарных жидкостей (обзор).....	45
§2.1. Физические основы метода измерения коэффициента межфазного натяжения с помощью возбуждения капиллярных волн радиационным давлением ультразвука.....	50

§2.2. Экспериментальная установка, принципы обработки результатов при импульсном (широкополосном) и квазигармоническом ультразвуковом возбуждении границы раздела жидкостей.....	55
--	----

§2.3. Результаты измерений коэффициента межфазного натяжения, полученные в условиях нормальной гравитации.....	61
§2.4. Результаты измерений коэффициента межфазного натяжения, полученные в условиях микрогравитации.....	64

Краткие выводы по результатам главы 2.....	69
--	----

## **ГЛАВА 3. СЕПАРИРОВАНИЕ ЭРИТРОЦИТОВ И ПЛАЗМЫ КРОВИ ЧЕЛОВЕКА С ПОМОЩЬЮ СТОЯЧИХ ПОВЕРХНОСТНЫХ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛН**

Введение к главе 3. Ультразвуковая манипуляция частицами в жидкости (обзор).....	71
--	----

§3.1. Экспериментальная установка и методика измерений.....	74
---	----

§3.2. Сепарирование частиц карбоната кальция в поле стоячих ПАВ.....	76
--	----

§3.3. Сепарирование эритроцитов крови человека в поле стоячих ПАВ.....	79
--	----

Краткие выводы по результатам главы 3.....	84
--	----

## **ГЛАВА 4. РЕГИСТРАЦИЯ НАНОЧАСТИЦ, ОБРАЗОВАННЫХ ПРИ УЛЬТРАЗВУКОВОЙ АБЛЯЦИИ В ВОДЕ ГИПСОВОГО ФАНТОМА ПОЧЕЧНЫХ КАМНЕЙ**

Введение к главе 4. Получение наночастиц с помощью абляции твердых тел в жидкости (обзор).....	85
--	----

§4.1. Экспериментальная установка и методика проведения экспериментов.....	87
--	----

§4.2. Результаты регистрации распределения наночастиц по размерам и массам, образованных в результате ультразвуковой абляции гипсового фантома почечных камней.....	90
---	----

Краткие выводы по результатам главы 4.....	96
--	----

<b>ЗАКЛЮЧЕНИЕ.....</b>	97
------------------------	----

<b>ПРИЛОЖЕНИЕ</b>	<b>1.</b>	<b>Экспериментальная оценка интенсивности ультразвука в фокальной плоскости фокусирующего преобразователя.....</b>	<b>99</b>
<b>СПИСОК РАБОТ СОИСКАТЕЛЯ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ.....</b>			<b>103</b>
<b>СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ .....</b>			<b>105</b>

## **ВВЕДЕНИЕ**

### **Актуальность темы исследования**

Ультразвук, являясь одним из видов возбуждений конденсированной среды, активно используется как для диагностики ее свойств, так и в качестве эффективного инструмента воздействия на нее. Несмотря на то, что эти два аспекта изучаются уже достаточно давно, интенсивное развитие обоих продолжается, стимулируемое научным интересом и потребностями развития современных технологий. В настоящей диссертации представлены новые результаты, полученные в обоих указанных направлениях исследований.

Одна из таких технологий называется "лаборатория на чипах" ("lab-on-a-chip"). Ее концепция предполагает создание микроустройств, предназначенных для проведения химических реакций в малых объемах жидкостей и манипулирования ими. Наряду с развитием известных, продолжаются поиски новых подходов к их созданию, в частности, в начале 2000-х была высказана идея создания "лабораторий на чипах" с акустическим "приводом" [Strobl C.J. et al., 2002]. Благодаря бесконтактности и дистанционности применение акустических технологий имеет свои преимущества как при воздействии на жидкости, так и в управлении положением находящихся в них частиц. К настоящему времени эта идея реализовалась в виде нового класса акустоэлектронных устройств, предназначенных для проведения в реальном времени химических и биологических автоматизированных анализов жидких растворов с очень малым (порядка микро- и нанолитров) объемом, а также оперативного синтеза таких растворов.

Важная роль в этих и ряде других процессов принадлежит ультразвуковым воздействиям, осуществляемым посредством радиационного давления ультразвука [Прохоров А.М., 1998], т.к. в этом случае именно оно определяет динамику движения границы жидкостей, особенности стимулированной ультразвуком эмиссии капель с границы раздела и возможности управления частицами в жидкости. Однако, в публикациях по

этой тематике до настоящего времени хорошо изучено лишь ультразвуковое воздействие на границу жидкость-газ, а также случай, когда граница между жидкостями может считаться бесконечной, вследствие чего эффектами взаимодействия жидкостей со стенками сосуда можно пренебречь. Ясно, что последнее условие не может быть применимо к устройствам, основанным на принципах "*lab-on-a-chip*", в силу их миниатюрности. И потому, имея в виду и указанные выше потенциальные приложения, исследование особенностей отклика границы несмешиваемых маловязких жидкостей, заключенных в малый объем, на ультразвуковое воздействие представляется необходимым и актуальным.

Особую роль в развитии и применении акустических технологий в "*lab-on-a-chip*" играют устройства с использованием поверхностных акустических волн (ПАВ) как наиболее совместимые с другими функциональными компонентами и технологиями микро- и наноэлектроники. ПАВ ультразвуковых частот уже используются в опытных образцах "лабораторий на чипах", однако ряд важных вопросов, в частности, особенности воздействия ПАВ на коллоидные растворы, требует дальнейшего изучения. Объясняется это возрастающим интересом к этой тематике в связи с возможностью создания периодических структур микро- и наночастиц, получаемых из коллоидных растворов и проявляющих свойства фотонных кристаллов. Подобные микро- и наноструктуры находят все большее применение в оптических устройствах, элементах хемосенсоров, в качестве гибких защитных слоев для светодиодов и пр.

Другая область возможного применения эффекта сепарирования коллоидных частиц в поле ПАВ связана с перспективами разработки компьютеризированных устройств анализа крови в концепции технологии "*lab-on-a-chip*". Определение концентрации эритроцитов при помощи традиционных гематологических анализаторов требует больших затрат времени, использования дорогих и ограниченных по сроку годности химических реагентов. Поэтому поиск и исследование альтернативных

способов определения этого важного параметра также актуален. В этом смысле большим преимуществом акустических методов применительно к диагностике крови является возможность выполнять подобные анализы без использования каких-либо химических реагентов (Гурбатов С.Н. и др., 2010). В работе (Руденко О.В. и др., 2010) экспериментально и с помощью численного моделирования показано, что с помощью ПАВ возможно управление ансамблем коллоидных частиц, причем тем эффективнее, чем больше отношение плотностей частиц и растворителя. Однако проблема состоит в том, что для эритроцитов и плазмы крови человека это отношение близко к единице, поэтому априори, только на основании теоретических оценок, невозможно предсказать, реализуем ли этот эффект. По этой причине экспериментальная проверка возможности сепарирующего воздействия ПАВ на такой важный с точки зрения возможных приложений в диагностике крови человека объект, как ее эритроциты, также является актуальной.

При достаточной интенсивности ультразвуковое воздействие может оказывать не только сепарирующее, но и деструктивное воздействие на конденсированную среду, например, на твердые тела, погруженные в жидкость. Одним из подобных примеров могут служить результаты, приведенные в работе Maxwell et al., 2015. В ней предложен и экспериментально реализован новый подход к разрушению фантомов и реальных почечных камней в воде. В отличие от известных ультразвуковых методов деструкции в нем используются ультразвуковые *радиоимпульсы*, имеющие относительно *небольшую*, порядка 6 МПа, амплитуду акустического давления в фокусе по сравнению с амплитудой порядка 100 МПа видеоимпульсов, используемых в литотриптерах. В серии экспериментов по разрушению гипсовых фантомов и образцов почечных камней было показано, что характерные размеры образующихся фрагментов монотонно уменьшаются с ростом несущей частоты ультразвука, достигая при частоте 800 кГц субмиллиметровых размеров. Имея в виду потенциальные медицинские и технологические приложения данного

эффекта, представляется актуальным продолжить экспериментальное исследование такого вида ультразвукового воздействия на твердые тела в жидкости при более высоких частотах ультразвука и амплитудах его акустического давления.

Диагностика параметров конденсированной среды с использованием ультразвука в диссертации представлены предложением и экспериментальной апробацией нового ультразвукового способа определения с повышенной точностью и скоростью измерения малых значений коэффициента межфазного натяжения (КМФН) бинарных жидкостей (БЖ). БЖ – это такие пары жидкостей, способность смешиваться и межфазное натяжение которых зависят от температуры и начальной концентрации каждой компоненты. Интерес к исследованию их свойств в последнее время растет, т.к. при работе с ними появляется уникальная возможность изменять значение их КМФН вплоть до нуля простым изменением температуры (Diwakar et al., 2018). В свою очередь, КМФН является одним из важнейших параметров, характеризующих физические свойства поверхности раздела конденсированных сред. Знание КМФН необходимо при изучении таких распространенных в природе и технологиях процессов, как образование туманов, пен, эмульсий, суспензий. В явлении адгезии, в различных капиллярных эффектах, имеющих место в узких трубках и каналах, имеющихся, например, в устройствах типа «*lab-on-a-chip*», поверхностное натяжение также играет важную роль. Однако, в случае БЖ известные методы измерения КМФН, такие как метод поднятия жидкости в капилляре, лежачей капли, врачающейся капли, и др., оказываются неэффективными. Это связано с воздействием измерительного оборудования на растворимость БЖ, зависящую от исходного содержания каждой компоненты и температуры (Kumar et al., 1983). В тоже время измерение малых значений КМФН востребовано, например, в материаловедении (Rhim et al., 1999; Hyers, Rogers, 2008). Для измерения малых значений КМФН между БЖ недавно предложен метод на основе неустойчивости Фарадея, реализуемый в

условиях микрогравитации и позволяющий достигнуть приемлемую точность измерений (Vibhor, 2016). Однако, у этого метода есть много недостатков: он требует достаточно массивного и громоздкого оборудования с повышенным энергопотреблением, что весьма критично для аппаратуры, предназначенной для работы на борту самолета или орбитальной станции. Получение необходимого набора экспериментальных данных и их последующая обработка требуют больших затрат времени, существуют трудности с автоматизацией эксперимента. Поэтому актуальна разработка ультразвукового метода, позволяющего определять малые значения КМФН у БЖ с достаточно высокой точностью и скоростью измерения.

Таким образом, диссертационная работа направлена на решение ряда актуальных задач, относящихся к указанным выше аспектам ультразвукового воздействия на конденсированную среду и диагностики ее параметров.

**Целью работы** является экспериментальное изучение особенностей динамики межфазных границ, эффектов сепарирования и абляции в двухкомпонентных конденсированных средах при ультразвуковом воздействии.

## **Основные задачи исследования**

В соответствии с заявленной целью было намечено решение следующих практически значимых задач:

1. Экспериментальное определение отклика границы несмешиваемых маловязких жидкостей, заключенных в цилиндрическую кювету, в зависимости от параметров импульсно-периодического воздействия сфокусированного ультразвукового пучка.
2. Разработка и апробация импульсного ультразвукового метода, позволяющего в условиях микрогравитации определять малые значения коэффициента межфазного натяжения несмешиваемых и бинарных

жидкостей с повышенной по сравнению с известными методами скоростью измерения.

3. Экспериментальная проверка возможности реализации эффекта сепарирования эритроцитов крови человека в поле стоячих поверхностных акустических волн.

4. Экспериментальное изучение особенностей деструктивного воздействия радиоимпульсов интенсивного сфокусированного ультразвукового пучка мегагерцового диапазона на гипсовый фантом почечных камней.

## **Методология**

Экспериментальная работа выполнялась на лабораторном оборудовании в ИОФ РАН (г. Москва, Россия), на физическом факультете МГУ (г. Москва, Россия), в IEMN (г. Лилль, Франция) и на борту самолета Airbus A310 Zero-G (г. Бордо, Франция). В экспериментальных исследованиях использовались современные цифровые приборы для генерации и измерения акустических, электрических и электромагнитных сигналов, а также были созданы экспериментальные установки, содержащие пьезопреобразователи, радиаторы, кюветы и акустические линзы. При необходимости ряд экспериментальных эффектов записывался с помощью высокоскоростных видеокамер видимого диапазона. Полученные видеозаписи и/или отдельные кадры подвергались математической обработке и анализу с помощью как стандартного программного обеспечения (ImageJ), так и с помощью оригинальных программ, написанных в среде Mathcad, MATLAB, LabView.

**Научная новизна** результатов, представленных в диссертации, состоит в том, что впервые:

1. Экспериментально установлены основные отличительные особенности ультразвукового возбуждения низшей симметричной моды

колебаний и эмиссии капель на границе несмешивающихся маловязких жидкостей, находящихся в малом объеме.

2. В условиях микрогравитации с помощью импульсного ультразвукового воздействия на интерфейс жидкостей измерены малые значения коэффициента межфазного натяжения несмешиваемых и бинарных жидкостей, отличающиеся повышенной точностью (не хуже 5%) и скоростью измерения.

3. Экспериментально реализован эффект сепарирования эритроцитов и плазмы крови человека в поле стоячих поверхностных акустических волн.

4. Зарегистрировано образование наночастиц с размерами в десятки нанометров при абляции гипсового фантома почечных камней в воде, реализуемой сфокусированными ультразвуковыми импульсами с несущей частотой 1.8 МГц и суммарным перепадом акустического давления в фокусе до 50 МПа.

## **Защищаемые положения**

1. Существует порог возбуждения низшей симметричной моды колебаний границы жидкостей, обусловленный силой сцепления жидкостей со стенками сосуда.

2. Существуют нижнее и верхнее пороговые значения области амплитуд ультразвукового воздействия на границу несмешивающихся маловязких жидкостей, внутри которой имеет место управляемая ультразвуком эмиссия одиночных капель одинакового размера. Размер таких капель линейно зависит от длительности импульса ультразвука в определенном диапазоне ее значений. Границы диапазона можно изменять, варьируя расстояние между плоскостями фокусировки ультразвукового пучка и раздела жидкостей.

3. Сепарирование эритроцитов и плазмы крови человека реализуемо в поле стоячих поверхностных акустических волн мегагерцевого диапазона и при их интенсивности, не возбуждающей акустические течения.

4. Возбуждение границы раздела несмешиваемых и бинарных жидкостей коротким ультразвуковым импульсом позволяет в условиях микрогравитации определить малые значения коэффициента межфазного натяжения погрешностью не хуже 5%.

5. Воздействие мощных сфокусированных ультразвуковых радиоимпульсов с несущей частотой в единицы мегагерц на гипсовый фантом почечного камня в воде приводит к его абляции с образованием в том числе частиц с размерами в десятки нанометров.

### **Практическая значимость полученных результатов**

1. Выявленные особенности стимулированного ультразвуковым воздействием движения границы раздела несмешивающихся маловязких жидкостей, заключенных в малый объем, могут быть полезны при разработке миниатюрных жидкостных систем, создаваемых в рамках концепции "лаборатория на чипах".

2. Реализованный эффект ультразвуковой эмиссии капель одинакового размера и продемонстрированные возможности управления их размерами могут быть использованы для создания дистанционных ультразвуковых прецизионных дозаторов микролитровых объемов жидкости, которые могут найти свое применение в системах "лаборатория на чипах".

3. Разработанный одноимпульсный ультразвуковой метод определения малых значений коэффициента межфазного натяжения несмешиваемых и бинарных жидкостей, благодаря повышенной скорости измерения и точности, может быть конкурентоспособен и востребован для использования в составе исследовательских комплексов, предназначенных для измерения параметров жидкостей в условиях микрогравитации (невесомости).

4. Реализованная в ходе работ над диссертацией экспериментальная демонстрация возможности сепарирования эритроцитов и плазмы крови человека в поле стоячих поверхностных акустических волн может служить

физической основой для разработки и развития в рамках концепции "лаборатория на чипе" автоматизированных методов анализа крови.

5. Представляется перспективным дальнейшее развитие предложенной схемы ультразвуковой абляции применительно к чистым металлам и другим материалам, наночастицы которых представляют интерес для научных и индустриальных приложений, а также создание которых по тем или иным причинам затруднительно существующими методами.

Научная и практическая значимость результатов выполненных исследований подтверждена также финансовой поддержкой, полученной благодаря грантам РФФИ 14-02-93105 НЦНИЛ\_а, 18-52-16001 НЦНИЛ\_а, программе президиума РАН № 5 "Фотонные технологии в зондировании неоднородных сред и биообъектов", стипендии им. Вернадского посольства Франции в Москве, Французскому национальному центру космических исследований (CNES) и Международной Ассоциированной Лаборатории критических и сверхкритических явлений в функциональной электронике, акустике и флюидике (LIA LICS).

**Достоверность** представленных в диссертационной работе результатов подтверждается результатами проверочных экспериментов, соответствием экспериментальных результатов теоретическим расчетам, а также результатам, независимо полученным другими авторами, использовавшими альтернативные экспериментальные подходы.

## **Апробация работы**

Материалы диссертационной работы прошли апробацию в ходе рецензирования опубликованных статей в редакциях журналов, входящих в список ВАК, а также были доложены на следующих научных российских и конференциях с международным участием: II Всероссийская акустическая конференция (Нижний Новгород, июнь 2017), Colloque Annuel du GDR MFA 2799 (Фрижюс, Франция, 2017), Школа-конференция молодых ученых

"Прохоровские недели" (Москва, ИОФ РАН, октябрь 2018), 17-ая Всероссийская школа-семинар "Волны 2019", Москва-Красновидово, май 2019, 32 сессия РАО, Москва, октябрь 2019.

## **Публикации**

По теме диссертации в журналах и сборниках конференций опубликовано 11 работ, из которых 5 статей опубликованы в рецензируемых журналах из списка ВАК.

## **Личный вклад автора**

Все изложенные в диссертационной работе оригинальные результаты получены автором лично либо при его непосредственном участии.

## **Структура и объем диссертации**

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения, приложения и списка цитируемой литературы. Общий объем составляет 110 страниц, включая 39 рисунков и 74 библиографических ссылки.

## **Благодарности**

Автор выражает глубокую благодарность своим научным руководителям: с российской стороны - д.ф.-м.н А.П. Брысову и с французской стороны - проф. Philippe Pernod, за постоянное внимание, конструктивную критику, поддержку и помошь в организации и проведении исследований, в том числе и в Институте электроники, микроэлектроники и нанотехнологий (IEMN – г. Лилль, Франция). Выражаю признательность д.ф.-м.н. В.Л. Преображенскому за большой вклад в теоретическое обоснование ряда задач и экспериментов. Автор искренне благодарен к.т.н. Л.М. Крутянскому за консультации и помошь в экспериментальной работе. Большое спасибо к.ф.-м.н. Б.А. Коршаку, к.ф.-м.н. Р.В. Клопотову и к.ф.-м.н. Ю.В. Пыльнову за полезные консультации и помошь в работе, проф. Farzam

Zoueshtiagh за помощь в проведении и интерпретации полетных экспериментов. Автор выражает благодарность Ph.D. B.B. Алешину за его всестороннюю поддержку и помощь во время работы в IEMN.

# ГЛАВА 1. ОСОБЕННОСТИ ДИНАМИКИ ГРАНИЦЫ НЕСМЕШИВАЮЩИХСЯ МАЛОВЯЗКИХ ЖИДКОСТЕЙ, НАХОДЯЩИХСЯ В МАЛОМ ОБЪЕМЕ, ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ИМПУЛЬСНО-ПЕРИОДИЧЕСКОГО СФОКУСИРОВАННОГО УЛЬТРАЗВУКОВОГО ПУЧКА

## Введение к главе 1. Воздействие ультразвука на границу стратифицированных сред (обзор)

История исследований взаимодействия ультразвука с поверхностью жидкости берет свое начало с 1927 года, когда в Tuxedo Park laboratory of Alfred Lee Loomis проводились эксперименты с акустическими пучками высокой интенсивности. В них впервые было замечено, что при погружении мощного акустического излучателя на дно ванны с маслом возникало вспучивание его поверхности, с которой вырывались капли масла, "подобно извержению миниатюрного вулкана" ("erupting oil droplets like a miniature volcano.") [1]. Однако очевидно, что ультразвуковое воздействие на границу раздела сред не ограничивается только эффектами типа эмиссии капель. При не слишком высоких интенсивностях ультразвука вызванная им локальная деформация поверхности раздела фаз может приводить к возбуждению и распространению гравитационно-капиллярных волн (ГКВ). И с точки зрения потенциальных приложений в различных научных и технологических областях [2] ультразвуковой метод возбуждения ГКВ является не менее перспективным, чем альтернативный подход, использующий эффект неустойчивости Фарадея. Чтобы придать этому выводу большую обоснованность, рассмотрим особенности обеих подходов более подробно.

Как известно, граница двух или более жидких слоев, подвергнутых вертикальным (или горизонтальным) колебаниям достаточно большой амплитуды, перестает быть плоской и неподвижной. Она проявляет неустойчивость в виде возникновения колебаний поверхности различной структуры. Впервые такую неустойчивость наблюдал Фарадей [3], поэтому

ее называют [4-5] неустойчивостью Фарадея. Она носит параметрический характер, т.е. в простейшем случае возникает тогда, когда частота колебаний сосуда с жидкостями вдвое превышает одну из собственных частот колебаний границы жидкостей, а амплитуда колебаний сосуда превышает пороговое значение. В настоящее время различные аспекты неустойчивости Фарадея продолжают изучаться как с фундаментальной, так и с прикладной точек зрения, представляя, например, интерес для исследований эффектов самоорганизации [6]. Примером непараметрического механизма возбуждения ГКВ, как уже отмечалось, является ультразвуковое воздействие на границу жидкостей. Физическим механизмом деформации границы жидкостей под действием ультразвука, как известно [7-8], является сила радиационного давления [75], возникающая при прохождении через границу раздела ультразвукового пучка и обусловленная разницей между средними по времени плотностями акустической энергии в контактирующих жидкостях. Под действием этой силы изначально плоская граница жидкостей изгибаются вверх или вниз в зависимости от знака радиационной силы, а величина такой деформации пропорциональна интенсивности ультразвука. По сравнению с упомянутым выше фарадеевским механизмом возбуждения ГКВ с двумя управляющими параметрами (частотой и амплитудой внешнего воздействия), привлекательность и перспективность для приложений ультразвукового механизма обусловлена тем, что в нем таких параметров гораздо больше. К ним можно отнести геометрию пучка, его амплитуду, несущую частоту, длительность и частоту следования ультразвуковых импульсов.

В литературе имеется достаточно много теоретических и экспериментальных работ, посвященных индуцированному ультразвуком эффекту деформации границы между жидкостью и газом (см., например, [9-11] и ссылки в них). В работе [10] с помощью лазерного интерферометра регистрировались акустически стимулированные деформации границы воздух-вода, что было использовано для измерения распределения интенсивности ультразвука в фокальной плоскости пучка.

Практическое использование эффектов воздействия ультразвука на поверхность жидкости также прошло свои этапы развития после упомянутых первых экспериментов 1927 года. Усовершенствования, выполненные в 1950-60-х годах, были направлены на повышение интенсивности звука путем локализации акустической энергии в акустических волноводах или с помощью акустических линз. При этом наблюдалось непрерывное испускание капель в виде гейзера или возникновение структур на поверхности жидкости, в которых некоторые из возмущений оказывались достаточно активными для отрыва капель [12]. Этот процесс в конце 1960-х годов был использован в коммерческих ингаляторах для создания тумана из лекарства [13]. В начале 1970-х годов начал развиваться новый подход, целью которого было формирование одиночных "капель по требованию" ("drop-on-demand") за счет применения в среднем менее интенсивного акустического воздействия, реализуемого при использовании импульсных фокусированных пучков [14]. Существенное продвижение в автоматизации и роботизации технологии "drop-on-demand", стимулируемое возникшей в 2000-е годы потребностью в точном дозировании жидкостей, позволили адаптировать технологию акустической эмиссии капель (*acoustic drop ejection technology - ADE*) к работе с объемами жидкости, измеряемыми микро- и даже пиколитрами [15]. В настоящее время такая технология является хорошо развитой и используется в высококачественных принтерах, анализаторах спектра жидкостей, современных технологиях, используемых в биологии, химии, пищевой и фармацевтической индустрии, а так же во многих других инженерных приложениях, где требуется прецизионное управление малыми объемами жидкости. Кроме того, ADE, будучи "неконтактной" технологией, в принципе позволяет производить необходимые манипуляции дистанционно, например, при проведении управляемых с Земли манипуляций с жидкостями на орбите или в дальнем космосе, а в ряде случаев может оказаться незаменимой, например, при работе с токсичными или радиоактивными жидкостями. Наконец, изучение

физики "ультразвуковой пипетки" актуально и в связи с интенсивным развитием нового типа функциональных микроструктур с перестраиваемой морфологией, именуемых "lab on chip" [16,17].

Вместе с тем, необходимо отметить, что все вышеизложенное относится к случаю ультразвукового воздействия на границу жидкость-газ, в то время как для случая границы жидкость-жидкость исследования продвинулись не так далеко. С целью экспериментальной проверки теории акустического радиационного давления Ланжевена в [11,18] были изучены деформации границы маловязких жидкостей (хлороформа и воды), расположенной в фокальной зоне сфокусированного ультразвукового пучка. Установлено, что для малых амплитуд деформаций экспериментальные результаты, полученные как для установившихся, так и для динамических режимов, находятся в хорошем согласии с теоретическими предсказаниями. Для больших амплитуд деформаций форма границы напоминает замочную скважину ("keyhole" shape), а ее поведение зависит от угла падения сфокусированного ультразвукового пучка. При этом отмечается, что качественно физическая картина похожа на ту, что имеет место при воздействии лазерного излучения [19,20]. Наконец, при более высоких интенсивностях ультразвука в фокальной плоскости возникает так называемый «ультразвуковой фонтан» или «струи». Такие явления в настоящее время используются для распыления жидкостей и коагуляции аэрозолей [21]. В [22] разработана аналитическая модель, описывающая зависящие от времени малые амплитуды деформации свободной поверхности жидкости. При этом предполагалось, что такие деформации вызваны давлением пространственно локализованных осесимметричных импульсных или непрерывных акустических или электромагнитных излучений, действующих на поверхность. Одновременно была представлена и численная модель поведения границы жидкость-жидкость под воздействием зависящего от времени радиационного давления. Корректность такой модели для промежуточных режимов и случая сильного затухания была

продемонстрирована на основе сравнения численных данных с результатами аналитической модели.

В целом можно отметить, что в рамках рассматриваемой тематики превалируют работы, в которых граница может считаться бесконечной, а воздействие ультразвука при этом осуществляется либо в непрерывном режиме, либо в виде одиночного импульса. В то же время потребности развития современных технологий типа упоминавшейся "lab on chip" требуют изучения динамики границы жидкостей, находящихся в малом объеме под действием импульсно-периодического воздействия ультразвука.

По этим причинам в настоящей главе основное внимание уделено экспериментальной реализации и анализу трех характерных режимов, сменяющих друга по мере нарастания уровня ультразвукового воздействия на границу двух несмешивающихся жидкостей, заключенных в малый объем:

1. вынужденные колебания интерфейса, не приводящие к эмиссии капель;
2. эмиссия отдельных капель, размером которых можно управлять в определенном диапазоне, меняя параметры ультразвукового пучка;
3. множественная и хаотичная ультразвуковая эмиссия капель

### **§1.1 Экспериментальная установка и методика эксперимента**

Как уже отмечалось выше, изучение стимулированного ультразвуком движения границы несмешивающихся жидкостей, находящихся в малом объеме, представляет интерес для развития ряда современных технологий, в частности, для так называемых "лабораторий на чипах". Имея это ввиду, модельные эксперименты по этому направлению проводились в небольшой цилиндрической кювете, в которой возбуждаемые ультразвуком колебания границы раздела жидкостей имеют вид стоячих волн. При этом под условием малости объема кюветы будем подразумевать то, что длина возбуждаемых в кювете волн сопоставима с ее размерами, и, прежде всего, с ее диаметром. В частности, имея в виду осевую симметрию эксперимента, наиболее простым, но наглядным случаем является возбуждение низшей симметричной моды

колебаний границы раздела, для которой половина длины волны равна внутреннему диаметру кюветы.

Схема экспериментальной установки для изучения возбуждаемой сфокусированным ультразвуковым пучком низшей симметричной моды колебаний границы несмешивающихся жидкостей представлена на Рис.1.1.1

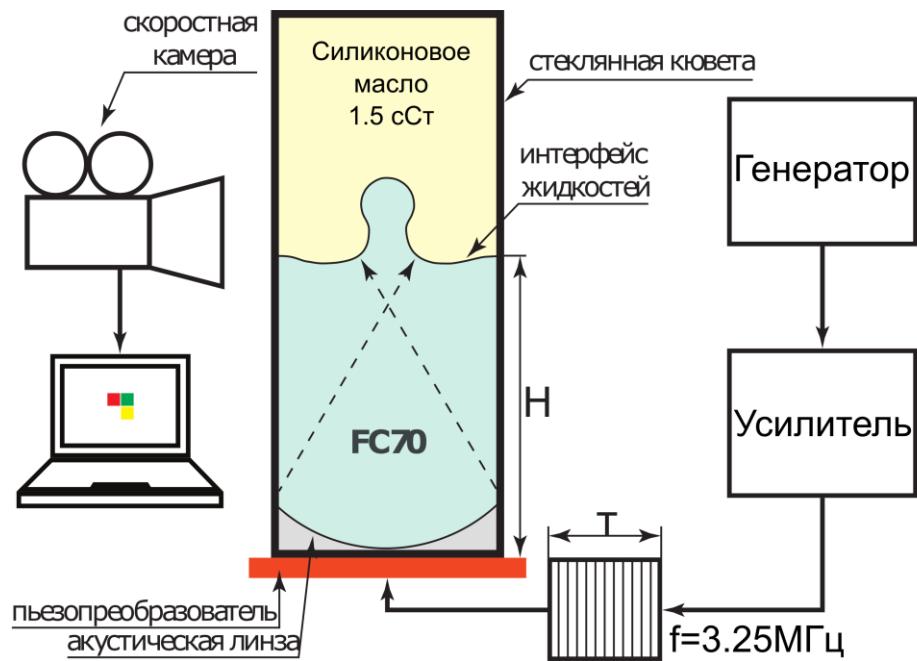


Рис. 1.1.1. Схема экспериментальной установки: пунктирная линия со стрелками указывает направление ультразвукового пучка; прямоугольное выделение пунктиром — область видеосъемки,  $H$  — расстояние между преобразователем и границей раздела жидкостей.

Эксперименты проводились в цилиндрической стеклянной кювете. Ее размеры составляли: высота  $H=56$  мм, внешний диаметр 18.8 мм, внутренний — 16.4 мм. Кювета наполнялась несмешивающимися жидкостями: перфлуоротрипентиламином (perfluorotripentylamine Fluorinert FC70) (плотность 1940 кг/м<sup>3</sup>, скорость звука 687 кг/м<sup>3</sup>, вязкость 12 сСт) и силиконовым маслом (далее будем использовать сокращение СМ) (плотность 853 кг/м<sup>3</sup>, скорость звука 919 кг/м<sup>3</sup>, вязкость 1.5 сСт). В данной экспериментальной конфигурации сфокусированный ультразвуковой пучок

излучался вертикально вверх через находящийся в нижней части ячейки слой флюоринерта FC70, обладающего большей, чем силиконовое масло плотностью. В такой геометрии и при таких параметрах жидкостей направление радиационной силы интегрально направлено тоже вверх. Сфокусированный ультразвуковой преобразователь, соосно смонтированный на дне ячейки, имел резонансную частоту  $f_0 = 2.7$  МГц, апертуру 15 мм и фокусное расстояние в FC70  $F = 17$  мм. Радиоимпульсы возбуждения ультразвука формировались в функциональном генераторе Tektronics AFG3102 и затем усиливались широкополосным усилителем Amplifier Research Model 100A400 номинальной выходной мощностью 100 Вт, что для ультразвука в жидкости обеспечивало мощность до нескольких Ватт.

Пространственно-временная эволюция границы жидкостей, деформируемой импульсным радиационным давлением ультразвука, записывалась при 50 мкс выдержки со скоростью 210 кадров в секунду и разрешением 640x480 пикселей с помощью высокоскоростной видеокамеры IMPERX IPX-VGA 210, установленной перпендикулярно общей оси преобразователя и ячейки. Такие параметры обеспечивали адекватное имеющимся экспериментальным условиям качество записи изображений пространственно-временной динамики границы раздела жидкостей под действием ультразвука. Длительность записей диктовалась условиями конкретного опыта и варьировалась в пределах 1.5 - 3.0 с. Последующий анализ записанных в цифровой форме изображений выполнялся с помощью программного обеспечения ImageJ. Его использование позволило измерять все необходимые в данной работе параметры пространственно-временной динамики границы жидкость-жидкость: амплитуду и временную форму колебаний границы раздела в любой её точке, пространственное распределение деформации. Для того, чтобы свести к минимуму мешающие наблюдениям колебаний границы эффекты типа ультразвукового фонтана, течений и т.п., в работе использовались достаточно короткие импульсы

ультразвука, максимальная длительность которых  $\tau_{max}$  была существенно меньше периода  $T=160$  мс их повторения (см. Рис. 1.1.2).

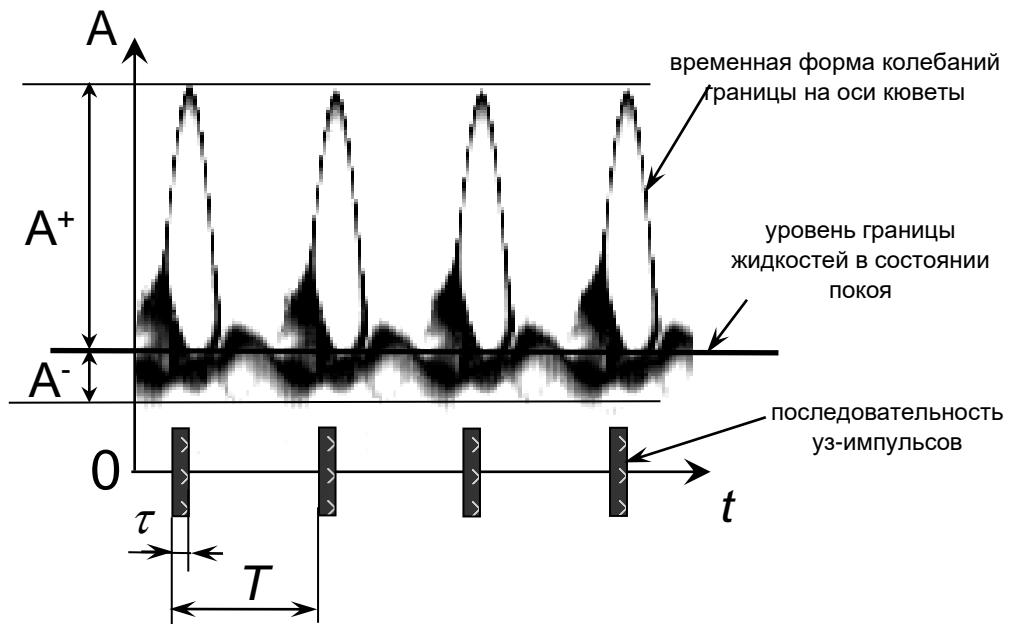


Рис. 1.1.2. Типичный временной профиль колебаний границы раздела жидкостей (зарегистрированных в середине кюветы), которые возбуждаются последовательностью ультразвуковых импульсов (показано ниже на временной оси  $t$ ).  $\tau$  и  $T$  – длительность и период импульса соответственно,  $A^+$ ,  $A^-$  – амплитуды положительных и отрицательных фаз колебаний границы раздела соответственно.

Одним из факторов, определяющих эффективность возбуждения таких вынужденных колебаний, является частота повторения ультразвуковых импульсов. Очевидно, что амплитуда колебаний интерфейса тем выше, чем ближе частота внешнего воздействия к частоте собственной моде колебаний границы раздела фаз.

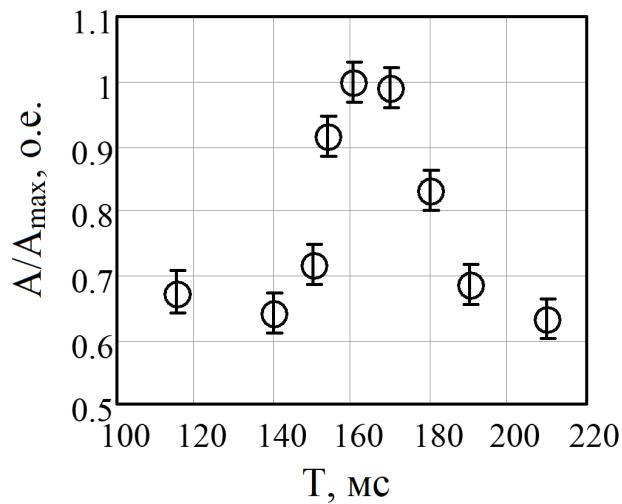


Рис. 1.1.3. Зависимость нормированной на максимальную амплитуду  $A_{\max}$  смещения границы раздела А от периода Т повторения ультразвуковых импульсов.

На Рис. 1.1.3 это обстоятельство иллюстрируется измеренной зависимостью амплитуды  $A$  смещения границы от периода  $T$  повторения ультразвуковых импульсов с максимумом при  $T_0=160$  мс. С учетом этого далее везде в серии данных экспериментов было зафиксировано значение  $T=T_0$ , при котором амплитуда возбуждаемой низшей симметричной моды колебаний границы раздела максимальна.

Кроме того, как было замечено в ходе предварительных экспериментов, другим фактором, определяющим эффективность возбуждения вынужденных сфокусированным ультразвуком колебаний границы раздела жидкостей, является ее расположение относительно фокальной плоскости. Рис. 1.1.4 иллюстрирует эту особенность более детально, представляя три характерных случая. В первом из них (Рис. 1.1.4а), когда высота слоя FC70 равна  $H=4.6$  мм, что меньше, чем фокусное расстояние преобразователя  $F=17.0$  мм, форма фронта ультразвуковой волны в плоскости границы раздела является вогнутой. Как следствие, пространственное распределение радиационной силы, не соответствует выпуклой форме нижней симметричной моды колебаний, которую должна принимать граница раздела при своем движении вверх под действием радиационной силы. Во втором случае (Рис. 1.4б), когда

граница жидкостей находится в фокальной плоскости ( $H \approx F$ ), форма волнового фронта близка к плоской, и при той же амплитуде напряжения на преобразователе, что и в первом случае, наблюдается хаотический выброс с границы раздела маленьких капель FC70 в силиконовое масло без каких-либо заметных колебаний границы раздела.

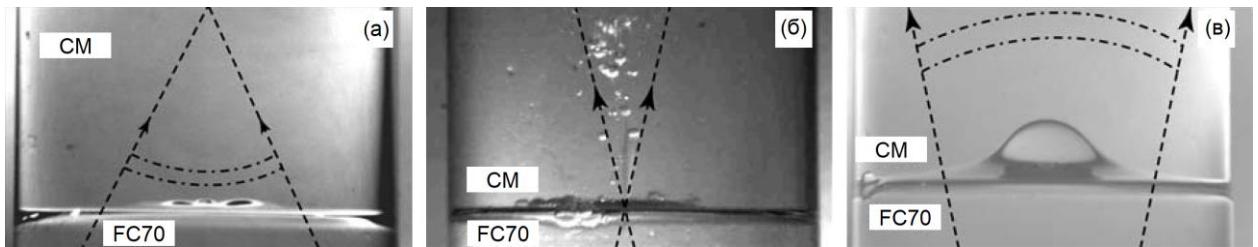


Рис. 1.1.4. Деформация границы раздела FC70–силиконовое масло, образованная под действием сфокусированного ультразвукового пучка с фокусным расстоянием  $F=17.0$  мм (при постоянном значении всех других параметров). Три случая уровня  $H$  жидкости FC70: а)  $H=4.6$  мм; б)  $H=17.0$  мм; в)  $H=23.1$  мм. Сфокусированный ультразвуковой пучок и направление его распространения показаны черными пунктирными линиями и стрелками соответственно. Форма фронта ультразвуковой волны схематически показана точечными и штриховыми линиями.

И только в третьем случае, когда величина  $H$  начинает заметно превышать фокусное расстояние  $F$  преобразователя ( $1.5 \geq H \geq 1.3F$ ) наблюдаются колебания границы раздела со значительными амплитудами (Рис. 1.1.4в). В этом случае форма волнового фронта является выпуклой, вследствие чего распределение радиационной силы давления ультразвукового излучения хорошо согласуется с выпуклой формой деформации границы, которую он принимает на начальном этапе колебаний нижней симметричной моды. Таким образом, представленные на Рис. 1.4 явления зависимости эффективности возбуждения колебаний от взаимного положения границы раздела и фокальной плоскости ультразвукового излучателя можно объяснить степенью соответствия пространственного

распределения радиационной силы и формы собственных колебаний границы раздела в начальной фазе их возбуждения.

Далее, как видно из Рис. 1.1.2, максимальная величина деформации границы раздела заметно отличается для фаз колебаний, соответствующих положительным и отрицательным смещениям границы жидкостей по оси  $X$ . Такое различие обусловлено тем, что сила давления ультразвукового излучения действует на границу только в начальный промежуток времени  $\tau$ , длительность которого меньше общей продолжительности фазы деформации в положительном направлении. Тем не менее, деформация границы раздела продолжает по инерции нарастать и после окончания акустического импульса. Оставаясь под воздействием только возвращающих сил тяжести и поверхностного натяжения, деформация границы раздела достигает своего максимума, после чего граница раздела движется вниз, минуя по инерции свое стартовое положение. При этом максимальная величина  $A^-$  оказывается в несколько раз меньше максимальной величины  $A^+$ , т.к. в фазе колебаний с отрицательными смещениями на границу раздела действуют только силы Архимеда и поверхностного натяжения, возвращающие его в стартовое положение. Кроме того, как показали дополнительные измерения, добротность собственных колебаний границы раздела  $Q \sim 10$ , что свидетельствует о достаточно сильном затухании в системе, обусловленном, в основном вязким трением в FC70. С учетом этих обстоятельств в дальнейшем при описании вынужденных ультразвуком колебаний границы раздела используется только более информативная величина  $A^+ \equiv A$ .

## §1.2 Ультразвуковое возбуждение низшей симметричной моды колебаний границы раздела жидкостей, заключенных в малый объем

### 1.2.1 Зависимость амплитуды колебаний низшей симметричной моды границы раздела от амплитуды и длительности импульсов ультразвука

Чтобы получить количественные характеристики импульсно-периодического ультразвукового воздействия на границу жидкостей, были

измерены зависимости амплитуды колебаний  $A$  границы раздела от квадрата амплитуды напряжения  $U$ , подаваемого на преобразователь (при постоянной длительности импульса  $\tau$ ), и от длительности импульса ультразвука  $\tau$  (при постоянном значении  $U$ ). При этом значения амплитуд  $A$  отсчитывались от положения границы раздела, соответствующего состоянию покоя.

На Рис. 1.2.1.1а представлена зависимость амплитуды деформации границы раздела  $A$  от квадрата напряжения  $U^2$  возбуждения преобразователя при фиксированной длительности импульсов ультразвука  $\tau = 14.3$  мс. Видно, что в основном, зависимость на Рис. 1.2.1.1а близка к линейной, что согласуется с результатами [B. Issenmann, A. Nicolas, R. Wunenburger, S. Manneville, J.-P. Delville, EPL (Euro-physics Letters) 83, 34002 (2008)]. Вместе с тем, видно, что при самых высоких значениях  $U^2$  линейный характер зависимости сменяется ее насыщением. Такое поведение можно пояснить с помощью Рис. 1.2.1.1б, где в верхнем ряду представлены изображения границы раздела в фазе максимальной деформации, соответствующие различным значениям  $U^2$ . На Рис. 1.2.1.1б в нижнем ряду показаны соответствующие временные формы колебаний границы раздела, измеренные на оси кюветы. Видно, что при достаточно высоких значениях  $U^2$  рост деформации границы раздела в положительном направлении оси  $X$  замедляется за счет возникновения перетяжки, что придает границе форму, похожую на замочную скважину. При еще более высоких значениях  $U^2$  влияние силы поверхностного натяжения на форму границы раздела возрастает еще больше: начинается формирование капли FC70 в силиконовом масле. Описание особенностей этого эффекта выходит за рамки данного рассмотрения. Таким образом, видно, что дальнейшему росту амплитуды  $A$  при увеличении  $U^2$  препятствует эффект формирования разрыва границы раздела.

Отметим, что вследствие цифрового характера анализируемых изображений, по которым производились измерения, минимальная абсолютная погрешность измерений амплитуды равна одному пикселю. С

учетом этого точность указанных

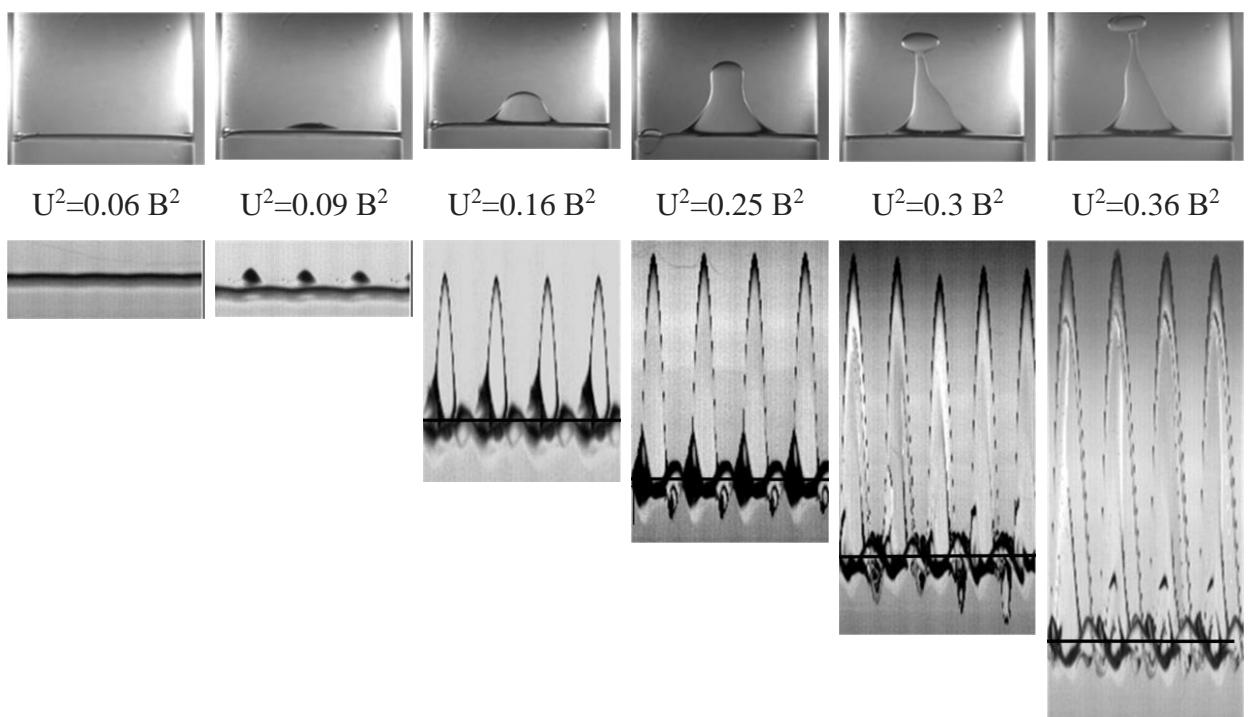
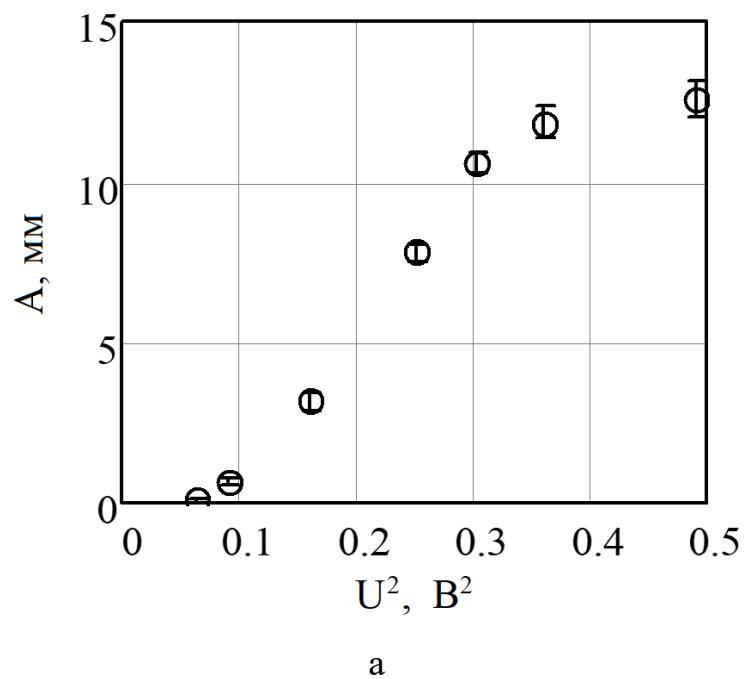
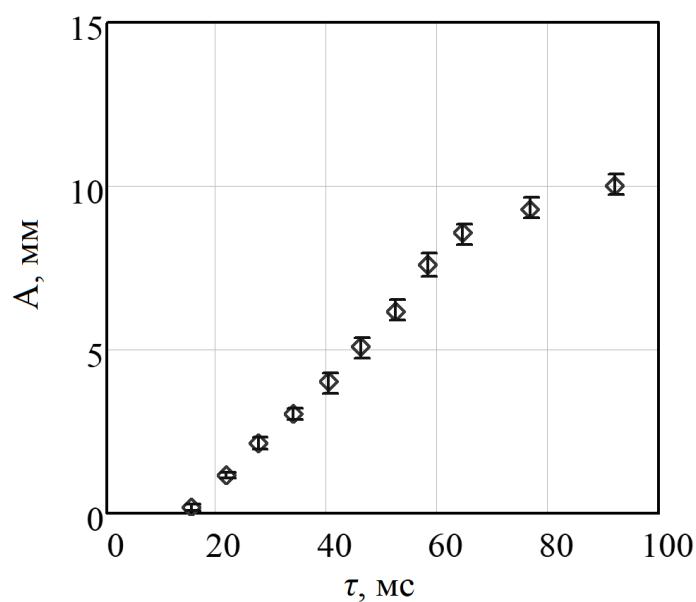


Рис. 1.2.1.1. а) Зависимость амплитуды А (положительной фазы колебаний границы раздела) от  $U^2$ .  $U$  – выходное напряжение от AFG3102,  $\tau=14,3$  мс; б) Изображения в первом ряду: деформация границы раздела жидкостей (моменты максимального смещения), получена для разных значений  $U^2$ .

Изображения во втором ряду: соответствующие временные профили колебаний границы раздела в средней части кюветы.

измерений определяется как толщиной соответствующей линии на изображении, так и разбросом значений амплитуды от импульса к импульсу. При этом первый фактор является преобладающим при малых значениях  $A$ , а второй доминирует при больших значениях  $A$ . По этим причинам относительная погрешность данных, представленных на Рис. 1.2.1.1а, Рис. 1.2.1.2а, монотонно уменьшается от 100% до 10% при увеличении от минимальных до максимальных значений аргументов  $U^2$  или  $\tau$  соответственно.

Зависимость амплитуды  $A$  от длительности ультразвукового импульса  $\tau$  при постоянной амплитуде возбуждения ультразвука  $U=0.3$  В представлена на Рис. 1.2.1.2а. В целом эта зависимость похожа на ту, что показана на Рис. 1.2.1.1а: по мере роста длительности ультразвукового импульса  $\tau$  здесь также наблюдается сначала линейный рост амплитуды  $A$ , который затем сменяется насыщением. Аналогично Рис. 1.2.1.1б на Рис. 1.2.1.2б представлена пространственная (верхний ряд) и временная (нижний ряд) эволюция профиля границы раздела.



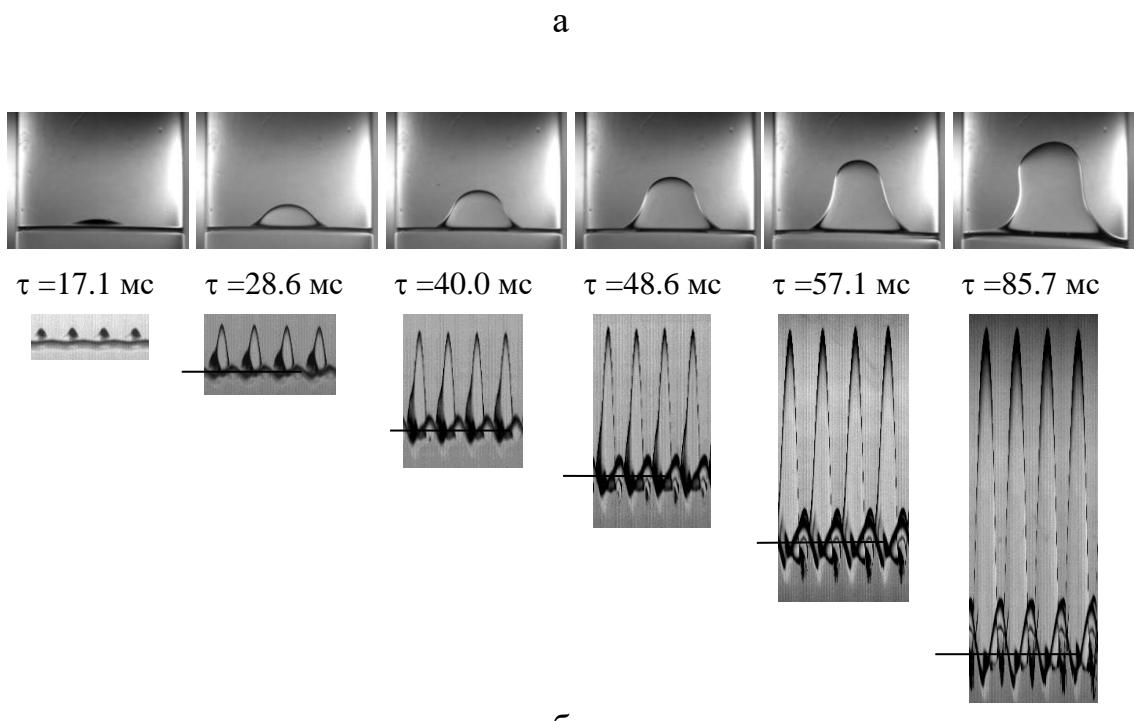


Рис. 1.2.1.2. а) Зависимость амплитуды А от энергии ультразвуковых импульсов  $E\sim\tau$  ( $U=0.3$  В). б) изображения в первом ряду: деформация границы раздела жидкостей (моменты максимального смещения), соответствующая разным длительностям ультразвуковых импульсов; изображения во втором ряду: соответствующие временные профили в средней части кюветы.

Наряду с рассмотренными выше общими чертами, в результатах, представленных на Рис. 1.2.1.1 и Рис. 1.2.1.2, наблюдаются и определенные отличия. Анализ Рис. 1.2.1.1, Рис. 1.2.1.2 показывает, что высота деформации границы раздела, в основном, определяется интенсивностью ультразвуковых импульсов, а ширина области деформации – их длительностью.

### 1.2.2 Порог ультразвукового возбуждения низшей симметричной моды колебаний границы раздела для разных пар жидкостей

Следует отметить, что для обеих зависимостей, представленных на Рис. 1.2.1.1а и Рис. 1.2.1.2а, характерна одна важная особенность: видно, что они исходят не из начала координат, а из точек оси абсцисс с не нулевыми

значениями  $U^2$  или  $\tau$ . Этот факт указывает на то, что имеет место порог ультразвукового возбуждения низшей симметричной моды колебаний границы раздела. Его существование можно пояснить следующим образом. С одной стороны, благодаря свойству несжимаемости жидкостей и, как следствие, сохранению ее объема при деформациях, подъем границы раздела в центральной части при возбуждении низшей симметричной моды колебаний должен сопровождаться ее опусканием у стенок сосуда и наоборот. Однако, с другой стороны, сила трения покоя, обусловленная силами сцепления жидкостей со стенкой содержащего их сосуда, будет препятствовать движению интерфейса у стенок. И такой баланс сил будет сохраняться до тех пор, пока сила радиационного давления не превысит силу трения покоя.

Поскольку силы сцепления со стенками сосуда зависят от свойств конкретных жидкостей, то порог возбуждения колебаний интерфейса должен быть различен у разных пар жидкостей. Для проверки данного предположения был выполнен дополнительный эксперимент, призванный показать не только наличие порога, но и то, что его величина для различных пар жидкостей так же различна. Существование и величина порога исследовались для двух пар различных жидкостей: FC70/СМ 1.5 сСт и FC72/СМ 1 сСт. Измерения проводились на экспериментальной установке, описанной ранее, при этом граница раздела жидкостей находилась от преобразователя на дистанции, равной  $1.3F$ , где  $F$  фокусное расстояние акустической линзы. Отметим, что погрешности измерений в данном случае обусловлены главным образом точностью разрешения положения покоящейся границы раздела жидкостей (2 пикселя) и точностью разрешения положения ее максимальной деформации на оси кюветы (2 пикселя).

Как и в предыдущих случаях, были получены два вида зависимостей амплитуды колебаний низшей симметричной моды на оси цилиндрической кюветы: от длительности ультразвукового импульса при постоянном напряжении на ультразвуковом преобразователе и от квадрата напряжения на

ультразвуковом преобразователе (интенсивности ультразвукового пучка) при постоянной длительности ультразвукового импульса. Для пары жидкостей FC70/CM1.5 сСт эти зависимости представлены на (Рис. 1.2.2.1,  $U^2=412$  В $^2$ ) и (Рис. 1.2.2.2,  $\tau=14.3$  мс) соответственно. Видно, что порог возбуждения вынужденных ультразвуком колебаний существует, а линейная аппроксимация дает следующие значения для пороговой длительности  $\tau_{\text{пор}}=0.48$  мс и для порогового квадрата напряжения  $U^2_{\text{пор}}=16.29$  В.

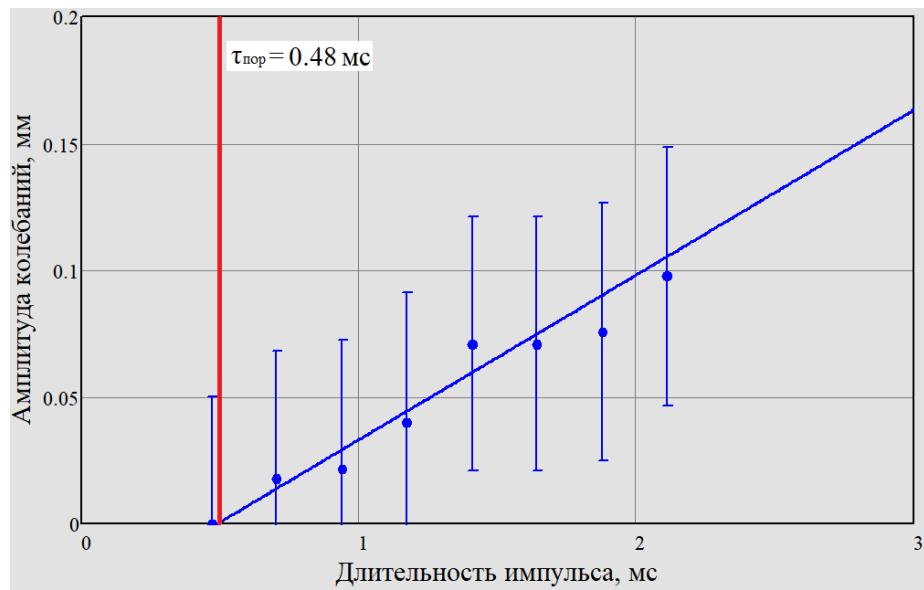


Рис. 1.2.2.1 Зависимость амплитуды колебаний в низшей симметричной моде от длительности импульса ультразвука (при квадрате амплитуды возбуждения  $U^2=412$  В $^2$ ) для пары жидкостей FC70/CM1.5 сСт,  $\tau_{\text{пор}}=0.48$  мс.

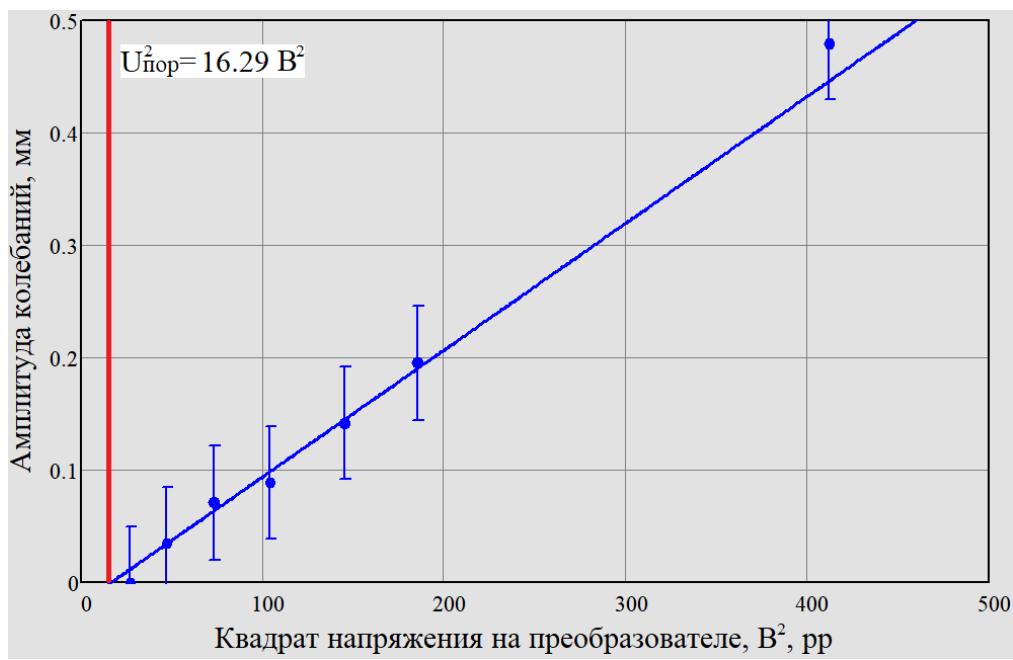


Рис. 1.2.2.2. Зависимость амплитуды колебаний в низшей симметричной моде от квадрата напряжения на ультразвуковом преобразователе (при постоянной длительности ультразвукового импульса  $\tau=14.3$  мс) для пары жидкостей FC70/СМ1.5 сСт,  $U^2_{\text{пор}}=16.29 \text{ В}^2$ .

На Рис. 1.2.2.3 и Рис. 1.2.2.4 представлены аналогичные зависимости для пары жидкостей FC72/СМ1 сСт, также демонстрирующие существование порога. Линейная аппроксимация для пороговых значений дает следующие величины:  $\tau_{\text{пор}}=0.01$  мс и  $U^2_{\text{пор}}=1.02 \text{ В}^2$ .

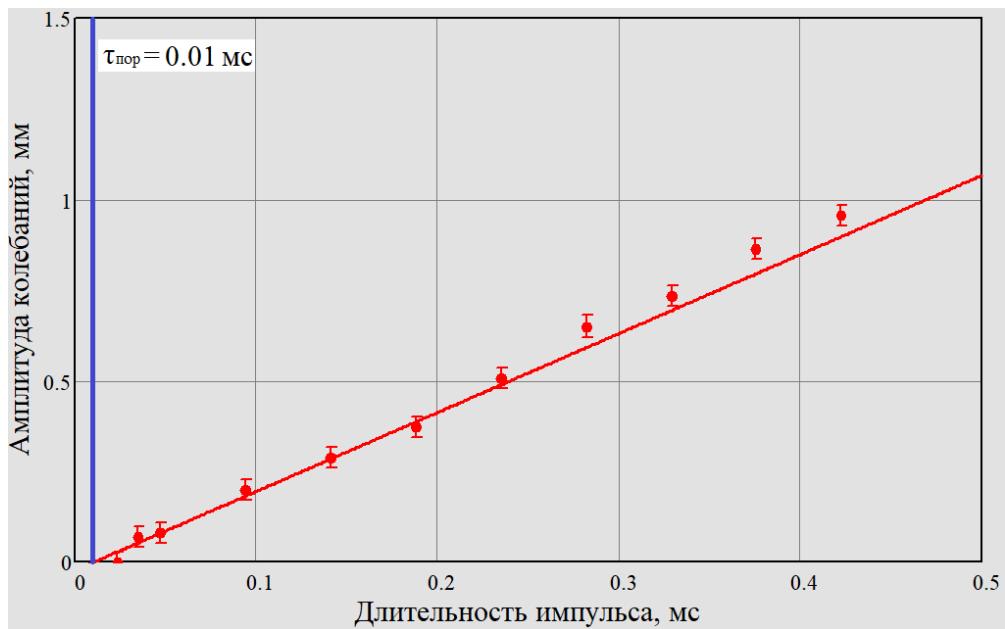


Рис. 1.2.2.3. Зависимость амплитуды колебаний в низшей симметричной моде от длительности импульса ультразвука (при постоянной амплитуде возбуждения  $U=20.3$  В) для пары жидкостей FC72/CM1 сСт,  $\tau_{\text{пор}}=0.01$  мс.

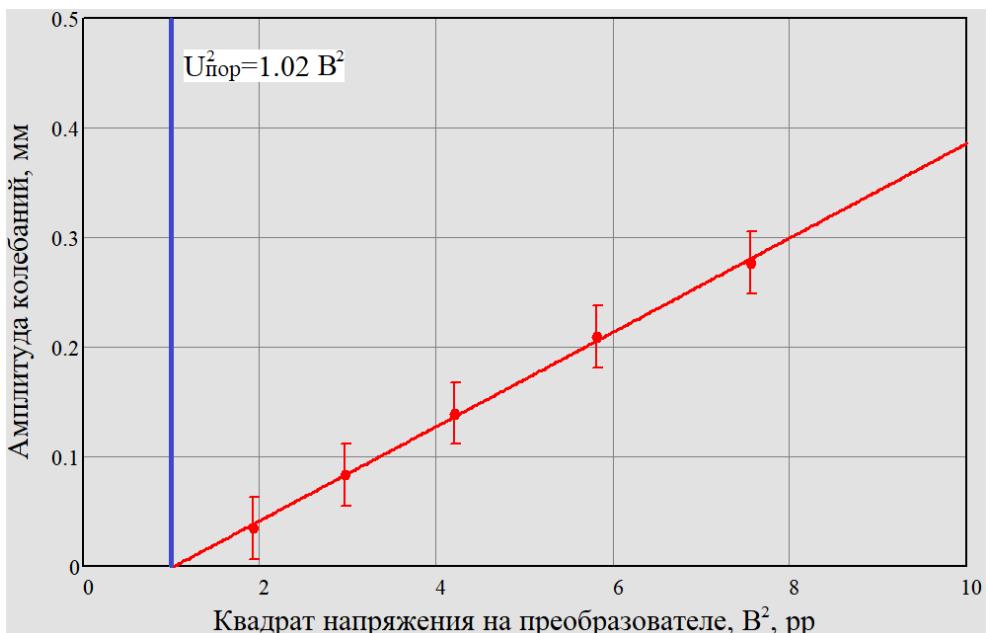


Рис. 1.2.2.4. Зависимость амплитуды колебаний в низшей симметричной моде от квадрата напряжения на ультразвуковом преобразователе (при постоянной длительности ультразвукового импульса  $\tau=14.3$  мс) для пары жидкостей FC72/CM1 сСт,  $U_{\text{пор}}^2=1.02 B^2$ .

Сравнение полученных зависимостей и пороговых значений для данных

двух пар жидкостей демонстрирует их существенное отличие, обусловленное различием в физических свойствах каждой пары жидкостей, и следовательно, разными значениями силы трения покоя.

### §1.3. Ультразвуковая эмиссия капель с границы раздела жидкостей

#### 1.3.1 Контролируемая ультразвуком эмиссия одиночных капель одинаковых размеров

При повышении по сравнению с §2 интенсивности ультразвукового пучка  $I_{\text{cr1}} < I_2 < I_{\text{cr2}}$  реализуется следующий режим его воздействия на границу раздела: ее целостность в верхней части "замочной скважины" нарушается за счет формирования одиночной капли FC70 (Рис. 1.3.1.1а-в). Важная особенность этого процесса состоит в том, что размер капли хорошо воспроизводится при каждом последующем<sup>1</sup> ультразвуковом импульсе (см. далее). Далее следует отрыв капли от границы раздела и последующее ее движение под действием силы тяжести в силиконовом масле (Рис. 1.3.1.1в-г). В отличие от хорошо известного эффекта ультразвукового фонтана, при котором случайным образом образуется множество капель различных размеров (см. далее в качестве примера изображения на Рис. 1.3.2.1 при высоких значениях интенсивности ультразвука  $I_{\text{cr2}} < I \sim U^2$ ) или даже струя жидкости, такая практически важная особенность может быть использована для управляемого формирования одиночных капель заданного размера.

---

<sup>1</sup> Период следования ультразвуковых импульсов больше, чем время, необходимое на формирование капли, ее падение на границу и вызванное этим затухание возмущений границы

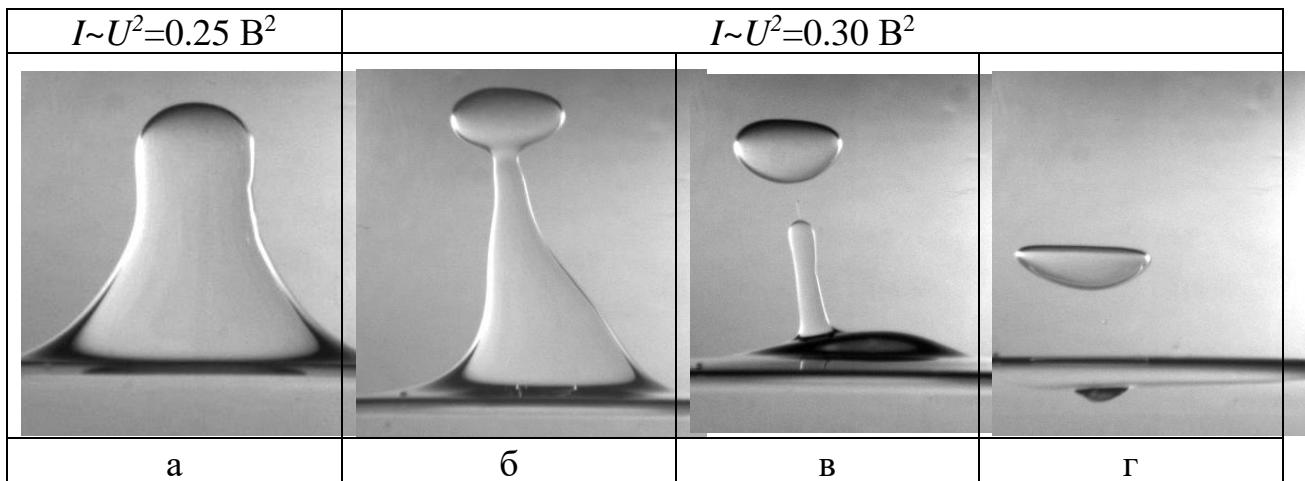


Рис. 1.3.1.1. Последовательные во времени фазы второго режима ( $I_{\text{cr1}} < I_2 < I_{\text{cr2}}$ ) импульсного ультразвукового воздействия на границу раздела жидкостей: а) – образование формы "замочной скважины" на деформированной ультразвуковым воздействием границе жидкостей; б) – формирование капли; в) – отрыв одиночной капли от границы раздела; г) – та же капля, что и на изображении (в), перед падением на границу.

По этой причине этот феномен нуждается в более пристальном изучении, что подразумевает достаточно точное количественное исследование двух основных вопросов:

- 1) с какой точностью в рассматриваемом режиме воспроизводятся размеры капель, возникающих при действии периодической последовательности ультразвуковых импульсов?
- 2) возможно ли с помощью ультразвука управлять размерами капель?

Ответ на первый вопрос иллюстрирует Рис. 1.3.1.2, на котором показаны полученные в одной серии измерений изображения капель, соответствующие каждому следующему друг за другом импульсу ультразвука (N - номер ультразвукового импульса в серии).

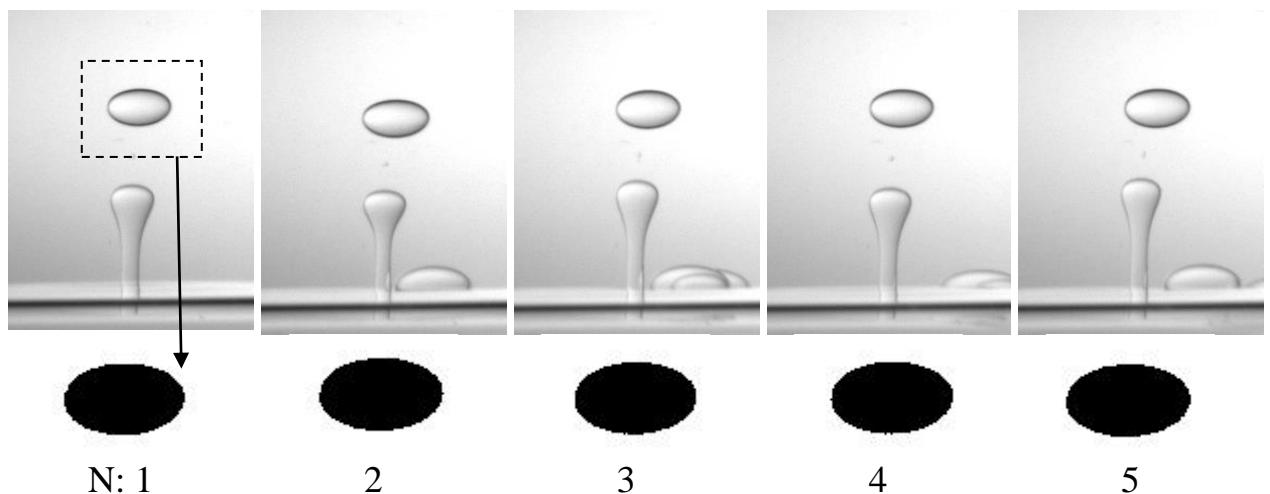


Рис. 1.3.1.2. Последовательные, от импульса к импульсу в одной серии, фотографии ультразвуковой эмиссии капель более плотной жидкости FC70 в менее плотное силиконовое масло с вязкостью 1.5 сСт (первая строка) и изображения этих же капель, преобразованные в двоичный код (N - номер ультразвукового импульса в серии). Прямоугольник на левом изображении верхней строки и стрелка во вторую строку иллюстрируют принцип цифровой обработки изображений и процесс измерения поперечного сечения капли.

Фотоизображения на Рис. 1.3.1.2 были получены при следующих значениях параметров эксперимента: период следования ультразвуковых радиоимпульсов  $T=1000$  мс, их несущая частота  $F=2.7$  МГц и длительность  $\tau=1.87$  мс соответственно, выходное напряжение генератора AFG3102  $U_p=1.70$  В, время выдержки камеры 55 мс (как видно из Рис. 1.3.1.2 этого вполне достаточно для получения резкого изображения движущихся капель), граница жидкостей находилась в фокальной плоскости пьезопреобразователя, т.е. на расстоянии 17 мм от него. Чтобы сравнение размеров капель, непрерывно меняющих форму при своем движении в силиконовом масле, было наиболее корректно, с помощью программы ImageJ последовательность изображений для количественного анализа размера капель отбирались из видеозаписи выбранной серии так, чтобы все они были в одной и той же «фазе» по времени, т.е. с тем же временным промежутком

между ними  $T$ , что и период следования ультразвуковых импульсов. На отобранных таким образом фотографиях с целью измерения площади поперечного сечения капли выделялась прямоугольная область, содержащая изображение капли (см. левое изображение в первом ряду Рис. 1.3.1.2), которое затем преобразовывалось в двоичный код (см. первое изображение во втором ряду Рис. 1.3.1.2). Такое преобразование позволяло отделить изображение капли от всех посторонних элементов и автоматически, средствами программы ImageJ, вычислить площадь ее поперечного сечения с высокой ( $\pm$  несколько пикселей) точностью, что обеспечивает относительную ошибку в этой операции менее 1%.

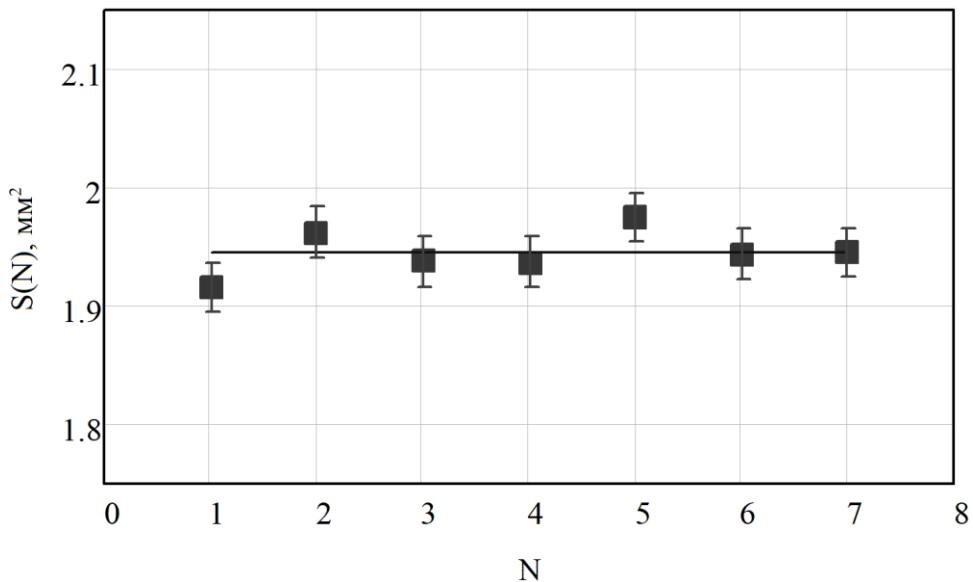


Рис. 1.3.1.3 Площадь поперечного сечения капли  $S$  (на изображении в двоичном коде) в зависимости от номера  $N$  ультразвукового импульса в серии. Среднее значение поперечного сечения капли  $S^m=1.945 \text{ мм}^2$  (горизонтальная сплошная линия) при значении стандартного отклонения  $\Delta S=0.021 \text{ мм}^2$

Из результатов, представленных на Рис. 1.3.1.3, следует, что среднее значение поперечного сечения капли в данной серии составило  $S^m=1.945 \text{ мм}^2$  при значении стандартного отклонения  $\Delta S=0.021 \text{ мм}^2$ . Отсюда следует, что точность воспроизведения размера капель в данном случае не хуже, чем

1.1%. Такое значение является очень хорошим показателем с экспериментальной точки зрения, и вполне достаточно для многих приложений рассматриваемого явления.

Необходимо отметить, что рассматриваемых в данной работе условиях динамика ультразвуковой эмиссии капель с границы между двумя жидкостями отличается от случая границы раздела жидкость-газ. В частности, в последнем случае в силу превалирования сил поверхностного натяжения форма образующейся капли всегда сферическая и не меняется во время движения капли. Это объясняется тем, что газ практически не оказывает никакого влияния на форму капель при тех скоростях, с которыми они движутся после отрыва от жидкости. В отличие от газового жидкостное окружение оказывают существенное влияние на форму капли, которая непрерывно меняет свою форму при движении в вязкой и плотной жидкости (см. Рис. 1.3.1.1). Как следствие, видимая проекция поперечного сечения капли также непрерывно изменяется по мере движения в верхней жидкости. В тоже время, очевидно, что объем не слишком быстро движущейся в жидкости капли при этом остается неизменным. Принимая эти факты во внимание, отбор кадров для последующих измерений площади сечения капель в дополнение к условию, описанном в комментариях к Рис. 1.3.1.2, проводился также с соблюдением второго условия. А именно, выбирались те кадры из записанной серии, на которых форму капель можно было считать близкой к эллипсоидальной (например, как на Рис. 1.3.1.2). При этих двух условиях измерения площади поперечного сечения капель (и, при необходимости, оценки их объема) оказываются более корректными.

Зависимость площади сечения капли  $S$  от длительности ультразвукового импульса  $\tau$  (при  $I=\text{const}$ ) для двух расстояний ( $H_1=17$  мм,  $H_2=27$  мм) границы раздела жидкостей до дна ячейки показана на Рис. 1.3.1.4. При этом процедура вычислений площади  $S$  осталась прежней, описанной ранее для Рис. 1.3.1.3.

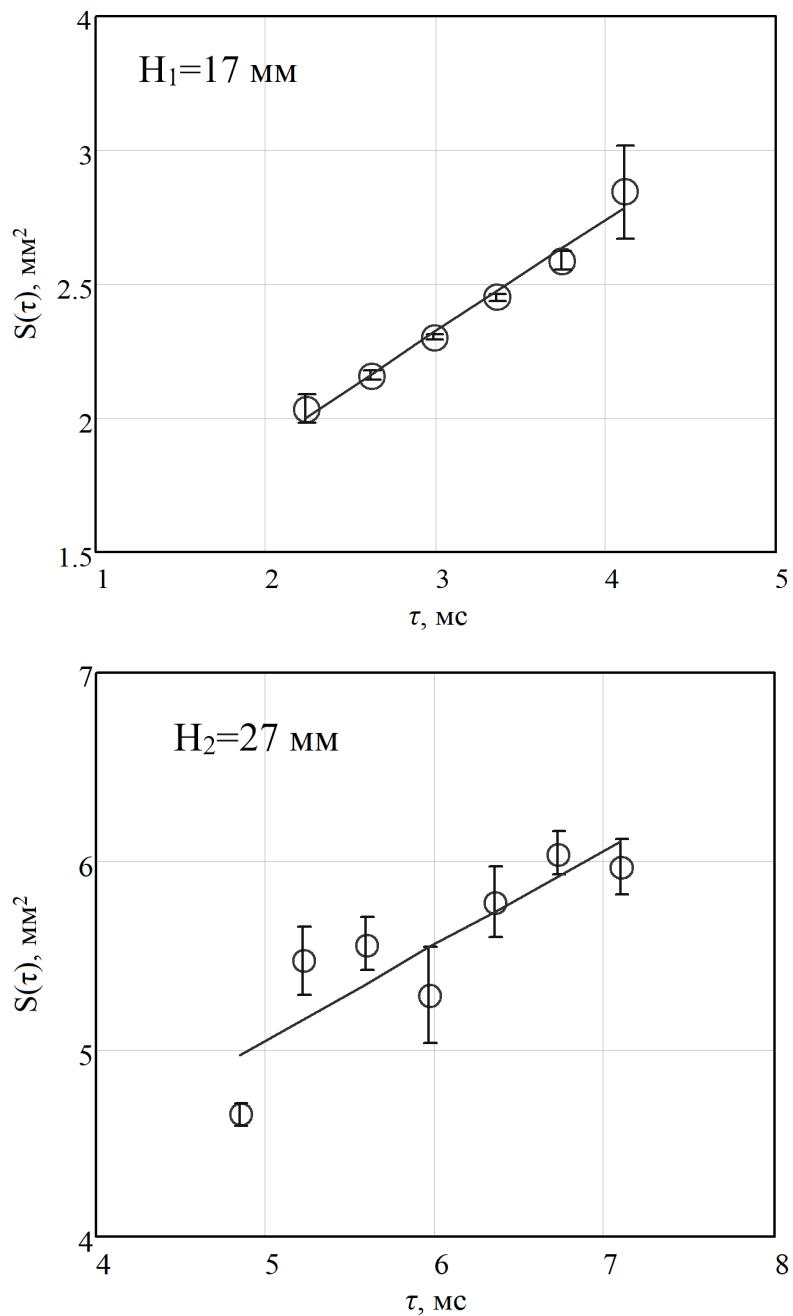


Рис. 1.3.1.4. Зависимость площади поперечного сечения капли  $S$  от длительности  $\tau$  ультразвукового импульса (при его постоянной амплитуде) для двух расстояний границы раздела жидкостей до дна ячейки:  $H_1=17$  мм для левого графика,  $H_2=27$  мм для правого графика (напомним, что фокусное расстояние преобразователя  $F_0=17$  мм).

Графики на Рис. 1.3.1.4 демонстрируют с достаточно высокой точностью линейную зависимость площади поперечного сечения капли  $S$  от длительности  $\tau$  ультразвукового импульса. Точка пересечения

апроксимирующей прямой с осью времени дает оценку порога для длительности ультразвукового импульса  $\tau$ .  $\tau_{cr1} \sim 1$  мс для левого графика и  $\tau_{cr1} \sim 3$  мс для правого графика, при превышении которого начинается ультразвуковая эмиссия капель в данных условиях. Оценка второго критического значения длительности импульса ультразвука, при превышении которого начинается третий режим, т.е. режим стохастической эмиссии множественных капель, дает следующие значения:  $\tau_{cr2} \sim 5$  мс для левого графика и  $\tau_{cr2} \sim 8$  мс для правого графика. Из результатов, представленных на Рис. 1.3.1.4 также следует важный для приложений вывод: область ультразвукового управления (контроля) размерами капель может в определенных пределах регулироваться за счет соответствующего выбора расстояния между границей раздела и фокальной плоскостью.

На Рис. 1.3.1.5 показаны результаты измерений площади поперечного сечения капли  $S$  (слева) и стандартного отклонения  $\Delta S$  (справа) при изменении квадрата выходного напряжения  $U^2$  генератора AFG3102 (по сути от интенсивности  $I$  ультразвукового импульса) при постоянной длительности импульса  $\tau$ . В отличие от графиков на Рис. 1.3.1.4 никакой заметной зависимости  $S$  от интенсивности ультразвука  $I$  в пределах точности измерений в данном случае не наблюдается. Лишь скорость выброса капель и, соответственно, высота их выброса увеличиваются с ростом интенсивности ультразвука.

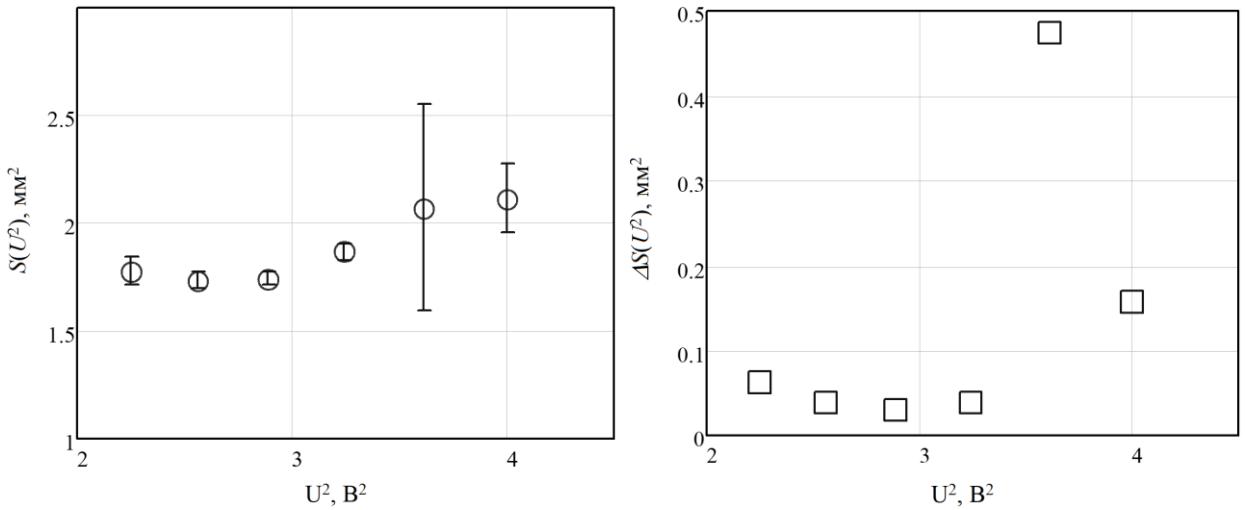
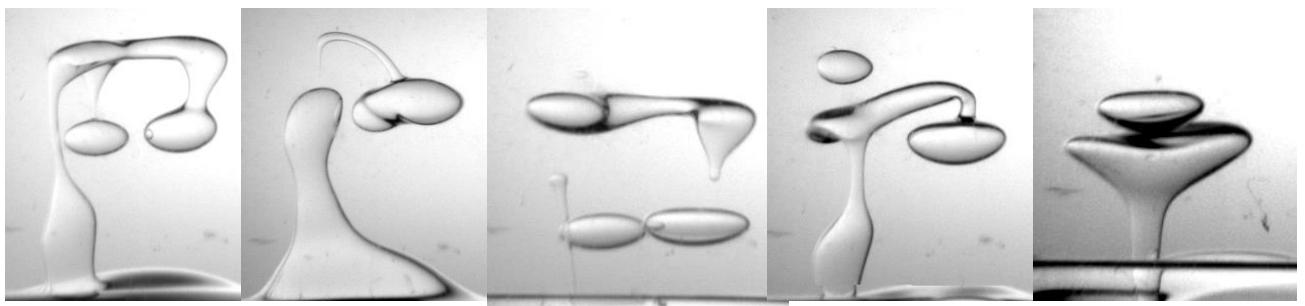


Рис. 1.3.1.5. Сопоставление площади поперечного сечения капли  $S$  (слева) и стандартного отклонения  $\Delta S$  (справа) от квадрата выходного напряжения  $U^2$  генератора AFG3102 (по сути, от интенсивности  $I$  ультразвукового импульса) при постоянной длительности импульса  $\tau$ .

### 1.3.2 Стохастическая ультразвуковая эмиссия множественных капель

Если ультразвуковое воздействие превышает второй критический уровень, характер эмиссии капель становится качественно иным. Вместо регулярного выброса одиночных капель происходит выброс нескольких капель с неконтролируемыми формой и размерами. В качестве примера того, что происходит в третьем режиме на Рис. 1.3.2.1 представлены фотоизображения нескольких капель более плотной жидкости FC70 в менее плотном силиконовом масле, образованных в результате воздействия на границу раздела жидкостей одной серии последовательных импульсов ультразвука ( $N$  – номер ультразвукового импульса в серии). Сравнение изображений на Рис. 1.3.1.2 и Рис. 1.3.2.1 с точки зрения отличия второго и третьего режимов представляется весьма наглядным и показательным.



N: 1                    2                    3                    4                    5

Рис. 1.3.2.1. Фотоизображения, иллюстрирующие множественную и хаотичную эмиссию капель более плотной жидкости FC70 в менее плотном силиконовом масле с вязкостью 1.5 сСт, имеющей место при воздействии на границу раздела жидкостей одной серии последовательных импульсов ультразвука в третьем режиме (N – номер ультразвукового импульса в серии).

### **Краткие выводы по результатам главы 1**

С помощью импульсно-периодического воздействия сфокусированного ультразвукового пучка реализовано возбуждение низшей симметричной моды колебаний границы несмешивающихся жидкостей, находящихся в ограниченном объеме. Показано, что наибольшая эффективность такого возбуждения реализуется тогда, когда частота ультразвукового воздействия совпадает с собственной частотой этой моды, а расстояние между границей жидкостей и плоскостью излучения ультразвукового пучка находится в пределах 1.3-1.5F, где F - фокусное расстояние преобразователя. Анализ измеренных зависимостей амплитуды колебаний границы раздела от амплитуды и длительности ультразвуковых импульсов выявил наличие порога возбуждения таких колебаний, обусловленного силами сцепления жидкостей со стенками сосуда и свойством несжимаемости жидкостей.

По мере роста интенсивности импульсного сфокусированного ультразвукового пучка, действующего на границу раздела двух несмешивающихся жидкостей, находящихся в малом объеме, выделено три характерных режима реакции границы: режим вынужденных колебаний

границы раздела, режим управляемой ультразвуком эмиссии одиночных капель одинаковых размеров и режим стохастической ультразвуковой эмиссии множественных капель. В первом режиме экспериментально обнаружено существование порога возбуждения колебаний границы раздела и показана зависимость его величины от состава жидкостей. Во втором режиме получена линейная зависимость размера эмитируемых капель от длительности ультразвукового импульса, имеющая место в определенном диапазоне длительностей. Показано, что положением границ этого диапазона можно управлять, изменяя расстояние между границей раздела жидкостей и плоскостью излучения ультразвука.

Описанный подход, как альтернативный к параметрическому методу возбуждения колебаний границы раздела жидкостей, известному как также как неустойчивость Фарадея, представляется особенно перспективным и важным для применения в условиях микрогравитации, реализуемых при полетах самолетов по параболической траектории или на борту орбитальных станций. Как известно, в таких случаях к бортовому экспериментальному оборудованию предъявляются жесткие требования, лимитирующие его размеры, вес и энергопотребление. И в этом смысле ультразвуковая аппаратура имеет очевидные преимущества в сравнении с существующими экспериментальными установками по реализации неустойчивости Фарадея, которые, как правило, более громоздки, тяжелы и энергозатратны.

Реализованный эффект ультразвуковой эмиссии капель одинакового размера и продемонстрированные возможности управления их размерами могут быть использованы для создания дистанционных ультразвуковых прецизионных дозаторов микролитровых объемов жидкости, которые могут найти свое применения в системах "лаборатория на чипах".

Наконец, третий режим может представлять интерес с точки зрения технологий производства эмульсий, суспензий и других процессов, где необходимо эффективное перемешивание различных компонентов.

## **ГЛАВА 2. ИЗМЕРЕНИЕ МАЛЫХ ЗНАЧЕНИЙ КОЭФФИЦИЕНТА МЕЖФАЗНОГО НАТЯЖЕНИЯ С ПОМОЩЬЮ ВОЗБУЖДЕНИЯ КАПИЛЛЯРНЫХ ВОЛН ИМПУЛЬСОМ РАДИАЦИОННОГО ДАВЛЕНИЯ УЛЬТРАЗВУКА В УСЛОВИЯХ МИКРОГРАВИТАЦИИ**

### **Введение к главе 2. Методы измерений коэффициента межфазного натяжения несмешивающихся и бинарных жидкостей (обзор)**

Одним из важнейших параметров, характеризующих физические свойства поверхности раздела конденсированных сред, является коэффициент межфазного натяжения (КМФН). В частном случае границы жидкости (или твердого тела) и газа используется понятие коэффициента поверхностного натяжения (КПН). Величина КМФН определяется видом (природой) контактирующих сред, температурой, наличием примесей на границе раздела сред. Знание КМФН необходимо при изучении таких распространенных в природе и технологиях процессов, как образование туманов, пены, эмульсий, суспензий. В явлении адгезии, в различных капиллярных эффектах, имеющих место в узких трубках и каналах, поверхностное натяжение также играет важную роль.

В последнее время возник интерес к исследованию свойств так называемых бинарных жидкостей (БЖ), то есть таких пар жидкостей, способность смешиваться и КМФН которых зависят от температуры и начальной пропорции каждой компоненты [23] (Kumar et al., 1983). Эти особенности обуславливают такое равновесное состояние системы жидкостей, при котором доля растворенной жидкости А в жидкости Б не обязательно оказывается равной доле жидкости Б, растворенной в жидкости А. При изменении температуры взаимная растворимость каждой из компонент так же изменяется вплоть до полной растворимости при определенной температуре, как это, например, продемонстрировано в подробном исследовании бинарной системы Fluorinert FC72 и силиконовое масло 1 сСт, выполненное в работе [24] Ancherbak et al. (2018). По этой

причине БЖ удобно использовать в тех экспериментальных исследованиях, в которых необходимо изменять величину КМФН до очень малых и даже нулевых значений, поскольку достигнуть этой цели в этом случае можно простым изменением температуры (см., например, [25] Diwakar et al., 2018).

В то же время положение во многих случаях осложняется тем, что отсутствует достаточно точная информация о значениях КМФН для той или иной температуры. И это неудивительно и объяснимо, если принять во внимание, что не всегда известные методы измерений межфазного натяжения оказываются пригодными. В качестве характерного примера рассмотрим так называемый "метод подвешенной капли". Суть этого метода состоит в том, что подвешенная на конце иглы капля жидкости помещается внутрь другой жидкости и затем регистрируется форма капли. Последующий математический анализ формы этой капли, получающейся как суммарный результат действия сил поверхностного натяжения и гравитации, в принципе позволяет вычислить КМФН. Однако, когда необходимо измерить малые и, тем более, очень малые значения КМФН, этот метод оказывается практически неработоспособным. Объясняется это тем, что в таких случаях необходимо использовать иглу очень малого диаметра, на конце которой должна находиться очень маленькая капля, что в условиях реального эксперимента будет препятствовать определению положения точки перегиба с достаточной точностью ([26] см. Stauffer, 1965). Далее, каждая новая добавка жидкости в систему, находящейся в состоянии равновесия, (в данном случае в висящую каплю), будет приводить к выводу системы из равновесия. Следовательно, уже нельзя будет установить связь между формой висячей капли и искомым значением КМФН.

Другим показательным примером является "метод вращающейся капли", состоящий в том, что капля жидкости меньшей плотности помещается в другую, более плотную жидкость, и вся эта система находится внутри горизонтально вращающегося цилиндра. При этом капля принимает вытянутую форму, определяемую балансом сил межфазного натяжения и

центробежной силы. Таким образом, форма капли становится функцией поверхностной энергии, которую можно оценить. Этот метод хорошо подходит для измерений малых и очень малых значений КМФН в диапазоне от нескольких мН/м до  $O(10^{-5})$  мН/м ([27] Cabane and Hénon, 2015). Однако, обычно он не используется для тех БЖ, компоненты которых должны находиться в строго определенном соотношении объемов (или масс) при том, что условие использования метода вращающейся капли одновременно предполагает, что объем капли должен быть много меньше объема окружающей жидкости. Следовательно, в такой конфигурации может происходить лишь простое смешивание и растворение маленькой капли в большом объеме окружающей жидкости. Тем не менее, такой метод все же может быть применен, но только для особых БЖ с малой объемной долей компонент (см., например, [28] Pojman et al., 2006). Наконец, есть специальный обзор ([29] Passerone 2011), который посвящен методам измерения поверхностного натяжения в условиях микрогравитации. И хотя применение этих методов в целом оправдано отсутствием влияния гравитации, но будучи в основном сосредоточены на использовании капель, они также не подходят для обсуждаемых жидких систем.

Альтернативный подход для измерения КМФН, который характеризуется неинвазивностью и простотой в применении, берет свое начало от метода, описанного Релеем ([30] Rayleigh, 1896). В его основе лежит возбуждение гравитационно-капиллярных волн (ГКВ) на поверхности жидкости с целью установления в эксперименте функциональной связи частоты колебаний  $\omega$  с волновым числом  $k$ . Соответствующее теоретическое выражение для дисперсионного соотношения было получено ранее Кельвином ([31] Thomson, 1871). Для границы между газом и глубокой идеальной жидкостью плотностью  $\rho$  и поверхностным натяжением  $\sigma$  оно имеет вид:

$$\omega^2 = gk + (\sigma / \rho)k^3, \quad (2.0.1)$$

где  $\omega = 2\pi f$ ,  $f$  – частота колебаний,  $k = 2\pi/\lambda$  – волновое число,  $\lambda$  – длина волны,  $g$  – ускорение свободного падения. Рэлей в своей работе получил также более общий вид приведенного уравнения, относящийся к случаю границы двух слоев идеальных жидкостей конечной толщины. Кроме того, Рэлей предложил использовать явление неустойчивости Фарадея ([3] Faraday, 1831) в качестве способа возбуждения ГКВ. Fauve et al. (1992) [32] с целью получить значение КПН из эксперимента с жидкостью и ее парой вблизи критической точки по полученным данным строили график функции  $\omega^2/k$  от  $k^2$ . Это давало искомую величину как тангенс угла наклона линейной аппроксимации такой зависимости. С точки зрения теории работа [32] была основана на работе Бенджамина и Урселла ([4] Benjamin and Ursell, 1954), в которой условия возникновения неустойчивости Фарадея были оценены для идеальной жидкости. Кумар и Такерман (Kumar and Tuckerman, 1994) развили теорию [5] неустойчивости Фарадея для границы двух несмешивающихся и вязких жидкостей.

Следуя теории [5] и результатам эксперимента [32], недавно были выполнены измерения малых значений КМФН в БЖ вблизи критической температуры растворимости ([33] Vibhor, 2016). При этом, с целью получения зависимости  $\omega(k)$  использовалось фарадеевское возбуждение различных мод колебаний в кювете и поиск частот этих мод, точно соответствующих наименьшим порогам возбуждения. Благодаря условиям микрогравитации, созданных в этом эксперименте на борту самолета, совершающего полет по параболической траектории, можно считать, что в дисперсионном уравнении присутствует только капиллярный член. Таким образом, для пары БЖ FC72 (перфторгексан) и 1 cSt силиконовое масло (октаметилтрисилоксан) для объемной доли в 50-50 % был измерен КМФН в диапазоне температур 38-41.5°C, т.е. ниже температуры смешиваемости (42.5°C). Потенциальным преимуществом такого метода является относительно высокая амплитуда возбуждаемых с помощью неустойчивости Фарадея мод, а, значит, хорошая точность воспроизведения закона дисперсии

$\omega(k)$ . Недостатком метода является его большая трудоемкость: в ходе поиска собственной частоты каждой отдельной моды требуется совершить несколько полетов по параболе, однако в итоге получается только одна точка  $[\omega_i, k_i]$ . И необходимо еще учесть, что для получения удовлетворительного по точности значения КМФН, таких точек в наборе для  $\omega(k)$  требуется порядка десяти, а лучше больше.

Чтобы устранить данный недостаток, в диссертационной работе предлагается новая модификация метода, описанного Cinbis и Khuri-Yakub (1992) в [34] и основанного на формуле Кельвина, которая позволяет получить информацию, достаточную для вычисления значения КМФН с достаточно высокой точностью, всего лишь за одну экспериментальную реализацию, т.е. за одну полетную параболу в случае проведения измерений в условиях микрогравитации на борту самолета-лаборатории. При этом за счет короткой длительности одиночного импульса бегущей ГКВ обеспечивается достаточный для корректного расчета КМФН диапазон частот исходных данных. Чтобы убедиться в достоверности получаемых таким образом результатов, а значит, и в применимости предлагаемого подхода, они сравниваются с результатами, независимо полученными альтернативным методом узкополосного возбуждения бегущих ГКВ в той же системе и для тех же пар жидкостей. Кроме того, в данной главе будет показано, что для пар жидкостей с очень малым значением КМФН его измерение с достаточно высокой точностью возможно только в условиях микрогравитации.

Благодаря тому, что предлагаемый одноимпульсный ультразвуковой метод измерения КМФН достаточно прост, доступен и не требует непосредственного контакта исследуемых жидкостей с измерительными элементами установки, он может быть перспективным предложением для измерения малых значений КМФН в такой важной области, как науки о материалах (см., например, [35-37] Tyson and Miller, 1977; Rhim et al., 1999; Hyers and Rogers, 2008).

## § 2.1. Физические основы метода измерения коэффициента межфазного натяжения с помощью возбуждения капиллярных волн радиационным давлением ультразвука

Дисперсионное уравнение для ГКВ малой амплитуды, распространяющихся по границе раздела двух глубоких слоев вязких жидкостей, имеет вид [5] (Kumar and Tuckerman, 1994):

$$\omega^2 = \frac{\rho_1 - \rho_2}{\rho_1 + \rho_2} gk + \frac{\sigma}{\rho_1 + \rho_2} k^3 - \left( 2k^2 \frac{\eta_1 + \eta_2}{\rho_1 + \rho_2} \right)^2 \quad (2.1.1)$$

здесь индексы 1,2 соответствуют более плотной и менее плотной жидкостям,  $\eta_{1,2}$  – их вязкости,  $\sigma$  – КМФН. В случае, когда толщина слоев жидкостей конечна, то  $\rho_1 + \rho_2$  и  $\eta_1 + \eta_2$  в (2.1.1) заменяются на соответственно  $\rho_1 coth(kh_1) + \rho_2 coth(kh_2)$  и  $\eta_1 coth(kh_1) + \eta_2 coth(kh_2)$ , где  $h_1$  и  $h_2$  – толщины слоев. На достаточно низких частотах  $\omega$  согласно [5] (Kumar and Tuckerman, 1994) вязкостью жидкостей можно пренебречь, и тогда уравнение (2.1.1) можно преобразовать к более простому виду:

$$\omega^2(\rho_1 + \rho_2)/k = b_0 + b_1 k^2 \quad (2.1.2)$$

где  $b_0 = g(\rho_1 - \rho_2)$  и  $b_1 = \sigma$ . Таким образом, имея набор экспериментальных точек  $\omega_i(k_i)$ , значение  $\sigma$  может быть вычислено как коэффициент  $b_1$  линейной регрессии уравнения (2.1.2). Отметим, что в условиях микрогравитации первый член в правой части (2.1.2) с  $b_0 \sim g$  можно опустить.

В отличие от работы [33] (Vibhor, 2016), в которой для возбуждения ГКВ на границе раздела используется неустойчивость Фарадея, в предлагаемом методе генерация таких волн происходит за счет внешнего ультразвукового воздействия на интерфейс. И это, в частности, избавляет от необходимости искать точные значения фиксированных частот стоячих ГКВ

и работать только на них, поскольку благодаря относительно короткому времени, затрачиваемому на получение необходимых экспериментальных данных, волны, отраженные от краев ячейки, не успевают внести какой-либо вклад в получаемые результаты. Отметим, что, вообще говоря, в предлагаемом подходе возможны два способа реализации, отличающиеся спектрами возбуждаемых волн и способами обработки полученной информации. В первом и главном из них, который будем называть «импульсным» и/или «широкополосным», используется ультразвуковое возбуждение и распространение достаточно короткого импульса ГКВ по границе раздела жидкостей. Во втором способе, который будем называть «квазигармоническим» или «узкополосным», предполагается распространение квазигармонической бегущей волны. При этом в обоих случаях возбуждение границы раздела обеспечивается силой радиационного давления ультразвукового пучка, сфокусированного на границу раздела жидкостей. Как известно, радиационное давление акустического излучения зависит от интенсивности ультразвукового пучка, плотностей сред и скоростей звука в них, (см., например, [8] Hamilton et al., 1998). Таким образом, воздействие на интерфейс может управляться огибающей ультразвукового сигнала. Отметим, что поскольку в данном случае важен лишь сам факт ультразвукового возбуждения волн на границе раздела, соответствующие абсолютные значения радиационного давления ультразвука рассматриваться не будут.

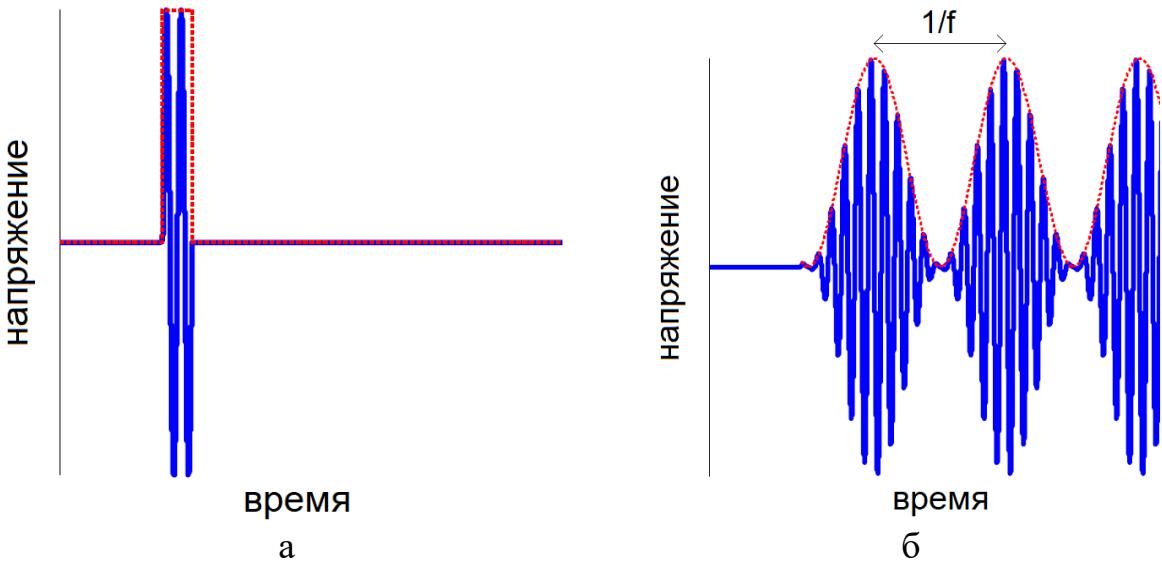


Рис. 2.1.1. Схематически показанные сигналы возбуждения ультразвука. а) при возбуждении одиночного импульса КГВ, б) при возбуждении квазигармонической КГВ частотой  $f$  амплитудно-модулированным сигналом с периодом модуляции  $1/f$ . Пунктирные линии огибающих условно отображают радиационную силу излучения ультразвука.

В качестве иллюстрации на Рис. 2.1.1 схематично показаны сигналы возбуждения ультразвука для двух рассматриваемых способов ультразвукового возбуждения ГКВ: импульсного (а) и квазигармонического (б).

В основе импульсного способа нахождения КМФН лежит экспериментальное нахождение дисперсии скорости  $V(\omega)$  ГКВ. Она вычисляется через фазовый сдвиг спектральных компонент распространяющегося широкополосного импульса ГКВ, аналогично тому, как это делалось в работе [38] (Не, 1999). В одномерном случае для спектральной компоненты с угловой частотой  $\omega$  ее фазу можно записать как  $\Phi(\omega)=\omega t-k(\omega)x+\phi_0$ , где  $k(\omega)=\omega/V(\omega)$  и  $x$  – координата. Разность фаз между точками  $x=l$  и  $x=r$  равна  $\Delta\Phi_{lr}(\omega)=-k(\omega)(l-r)$ , и следовательно искомая дисперсия будет равна

$$V(\omega)=-\omega(l-r)/\Delta\Phi_{lr}(\omega) \quad (2.1.3)$$

Дисперсию  $V(\omega)$  можно получить из (2.1.3), как это будет описано ниже, используя спектры Фурье  $F_r(\omega)$ ,  $F_l(\omega)$  сигналов волновых форм (ВФ)  $Y_r(t)$  и  $Y_l(t)$ , полученных в точках  $x=r$  и  $x=l$ , соответственно. Как и в работе [38] Не (1999), ВФ перед преобразованием Фурье циклически сдвигались влево на  $t_r$  и  $t_l$ , соответственно во временном окне оцифровки  $(t_0; t_0+T_{acq})$ , где  $t_0$  и  $T_{acq}$  – время начала и длительность всего сигнала,  $t_r$  и  $t_l$  - координаты соответственно максимума ВФ, полученных в точках  $x=r$  и  $x=l$ . Тем самым, часть волновой формы, расположенная справа от максимума, сдвигалась в начало окна оцифровки  $t_0$ , а другая часть, что слева от максимума, оказывалась справой стороны окна, начиная с момента времени  $t_0+T_{acq}-t_{r,l}$  и до конца окна. Такой алгоритм повышает точность вычисления фаз для сигналов с малой амплитудой на границах временного окна. Для того, чтобы найти времена  $t_r$  и  $t_l$ , вычислялись так называемые аналитические сигналы  $H(Y_{r,l})$ , т.е. сигналы без отрицательных компонент спектра [39] (Marples, 1999), используя преобразование Гильберта сигналов  $Y_{r,l}(t)$ . Огибающие исходных сигналов вычислялись в виде зависящих от времени абсолютных величин  $|H(Y_r)|$ ,  $|H(Y_l)|$ , а моменты времени  $t_r$  и  $t_l$  искались как координаты максимумов соответствующих огибающих. Чтобы получить значения  $V(\omega)$ , используя (2.1.3), полные фазы рассчитывались на основе времен задержки огибающих  $t_r$  и  $t_l$  и т.н. "развернутых" фаз спектральных компонент  $\Phi(\omega)$ . Несмотря на то, что вычисление фазы  $\phi(\omega)$  посредством преобразования Фурье предполагает для нее диапазон значений от  $-\pi$  до  $\pi$ , процедура развертки фаз восстанавливает полную фазу  $\Phi(\omega)$ , исключая периодическое уменьшение фазы на  $2\pi$ . В качестве исходной точки развертки можно выбрать частоту  $f_0$ , имеющую значительную спектральную плотность мощности [38] (Не, 1999). Поскольку для частоты  $f_0$  фаза  $\varphi$  может быть достоверно найдена, абсолютное значение этой частоты не влияет на итоговую величину фазы  $\Phi(\omega)$ . Таким образом, процедуру развертки полной фазы следует производить в обоих направлениях от частоты  $f_0$ . В рассматриваемом случае значение частоты  $f_0$

было выбрано равным 8.0 Гц. Окончательно, фазовый сдвиг для подстановки в выражение (2.1.3) рассчитывается как

$$\Delta\Phi_{lr}(\omega)=\Phi_l(\omega)-\Phi_r(\omega)-(t_l-t_r)\omega, \quad (2.1.4)$$

где  $\Phi_{l,r}(\omega)$  развернутые фазы спектра БПФ в точках  $x=l$  и  $x=r$ , соответственно. Последний член в выражении (2.1.4) компенсирует упомянутую ранее процедуру циклического сдвига формы волны. После получения всех точек  $V(\omega)$ , можно найти множество пар точек  $\omega_i$  и  $k_i$  и подставить их в (2.1.2).

Квазимохроматический или узкополосный способ получения закона дисперсии ГКВ известен со времен Релея. Здесь он используется как вспомогательный для сравнительных измерений. Последовательность псевдопериодических капиллярных волн возбуждалась с помощью амплитудно-модулированного (АМ) ультразвукового пучка, излучаемого источником (см. Рис. 2.1б). Синусоидальные огибающие АМ-сигнала имели значения частот  $\omega_i$ , лежащие в требуемом диапазоне частот. Для каждой частоты  $\omega_i$ , как и при импульсном возбуждении, были получены две ВФ  $Y_r^i(t)$  и  $Y_l^i(t)$  в двух сечениях  $x=r$  и  $x=l$  соответственно. Для известных координат  $r, l$  и временного промежутка  $\tau_i$  (времени задержки), соответствующего ВФ  $Y_r^i(t)$ ,  $Y_l^i(t)$  скорость волны  $V_i$  с частотой  $\omega_i$  рассчитывается по простой формуле  $V_i(\omega_i)=|l-r|/\tau_i$ . Время  $\tau_i$ , находилось как координата максимума функции взаимной корреляции  $R_i(\tau)=Y_r^i(t)*Y_l^i(t)$ , здесь знак звездочки "\*" обозначает взаимокорреляционную функцию. Расстояние  $|l-r|$  выбралось таким образом, чтобы искомое время задержки  $\tau_i$  не превышало одного периода волны. Следует подчеркнуть, что при таком способе измерений в условиях микрогравитации для получения одной пары значений  $V_i$ ,  $\omega_i$  необходимо затратить одну полетную параболу.

## § 2.2. Экспериментальная установка, принципы обработки результатов при импульсном (широкополосном) и квазигармоническом ультразвуковом возбуждении границы раздела жидкостей

Для экспериментов по измерению КМФН предложенным методом были взяты две пары жидкостей, свойства которых заметно отличаются. Первая пара – это несмешиваемые жидкости FC70 (перфтортрипентиламин) и силиконовое масло (СМ) вязкостью 1.5 сСт (декаметилтетрасилоксан). Вторая пара - БЖ, образованная жидкостью FC72 (перфторгексан) и СМ вязкостью 1.0 сСт (октаметилтрисилоксан). Все эти жидкости стабильны, инертны, нетоксичны и потому часто используются в исследованиях по гидромеханике жидкостей. В первой паре жидкости более вязкие, чем во второй паре, поэтому КМФН первой пары ([40] Someya and Munakata, 2005) заведомо больше, чем у второй пары жидкостей ([41] Ward, 2018; [33] Vibhor, 2016).

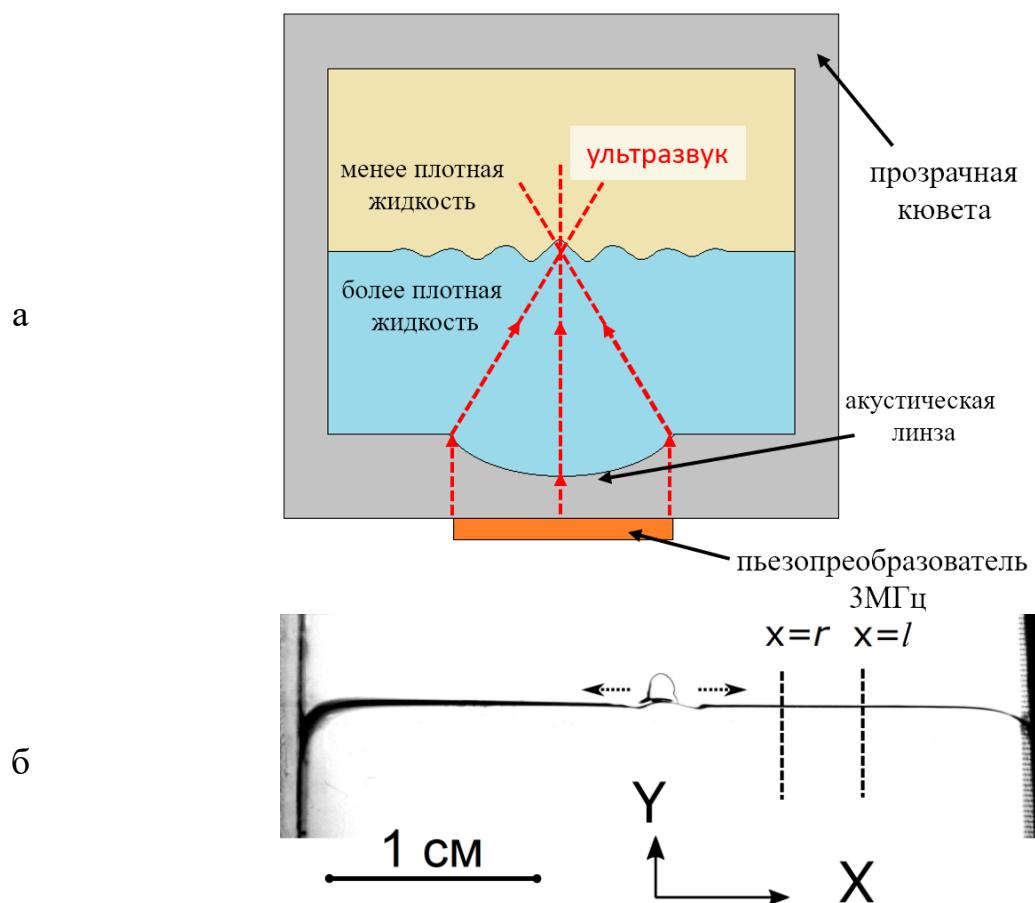


Рис. 2.2.1. а) Схема возбуждения ГКВ на границе раздела жидкостей в кювете. Т – ультразвуковой преобразователь. Стрелки схематически показывают направление распространения и границы ультразвукового пучка. б) Сделанная в условиях микрогравитации фотография начального момента возбуждения ГКВ. Противоположно направленные стрелки показывают распространение двух возбужденных волн. Пунктирные линии - два сечения, в которых фиксировались временные волновые формы колебаний интерфейса при распространении ГКВ.

Экспериментальная схема представлена на Рис. 2.2.1. Плоская плексигласовая кювета, имеющая внутренние размеры  $35 \times 28 \times 4$  мм заполнялась парой жидкостей (либо FC70 и СМ 1.5сСт, либо FC72 и СМ 1сСт) в равной доле по объему при  $20^{\circ}\text{C}$ . Для первой пары жидкостей плотность и вязкость имеют следующие значения:  $\rho_1=1940 \text{ кг}/\text{м}^3$ ,  $\rho_2=853 \text{ кг}/\text{м}^3$  и  $\eta_1=0.0233 \text{ Па}\cdot\text{с}$ ,  $\eta_2=0.00128 \text{ Па}\cdot\text{с}$ , соответственно. Пара FC72 и СМ 1 сСт частично смешивается, поэтому свойства её компонентов сильно зависят от температуры. При температуре  $20^{\circ}\text{C}$  значения плотностей и вязкостей следующие:  $\rho_1=1586 \text{ кг}/\text{м}^3$ ,  $\rho_2=900 \text{ кг}/\text{м}^3$ , и  $\eta_1=7.04 \cdot 10^{-4} \text{ Па}\cdot\text{с}$ ,  $\eta_2=8.81 \cdot 10^{-4} \text{ Па}\cdot\text{с}$ , соответственно ([41] Ward, 2018). Плоский пьезоэлектрический преобразователь Т с резонансной частотой 3 МГц имел размеры  $14 \times 0.6 \times 4$  мм и через акустический контакт симметрично по оси кюветы фиксировался на ее внешней нижней части. В нижней части камеры кюветы имелась акустическая собирающая линза, образованная цилиндрическим вырезом, фокусирующая ультразвуковой пучок вблизи границы раздела жидкостей (Рис. 2.2.1а). Преобразователь возбуждался радиосигналом с несущей частотой 3 МГц либо в виде импульса длительностью около 1 мс, либо в виде 100% амплитудно модулированной на требуемой низкой частоте  $\omega_i$  несущей и длительностью несколько периодов модулирующей частоты. Волновые процессы на границе раздела жидкостей записывались видеокамерой Vieworks VC-2MC с разрешением 2048x600 точек и скоростью  $F_R=600$

кадров в секунду. При этом точность измерений по вертикальной оси Y составляла 18 мкм/пиксель.

На Рис. 2.2.1б в качестве примера показана сделанная в условиях микрогравитации фотография начинающих распространяться от центра кюветы в противоположных направлениях капиллярных волн, возбужденных сфокусированным пучком ультразвука.

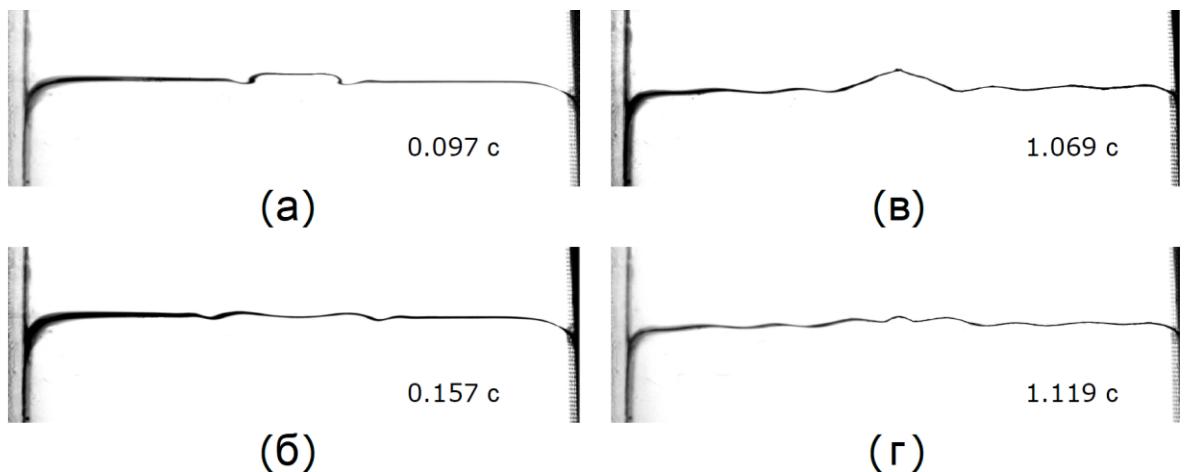


Рис. 2.2.2. Сделанные в условиях микрогравитации фотографии интерфейса пары жидкостей FC72/1.0 сСт при импульсном (а, б) и квазигармоническом (в, г) возбуждении капиллярных волн. Счетчик времени запускался с началом соответствующего возбуждающего сигнала.

На Рис. 2.2.2 показаны сделанные через определенный промежуток времени фотографии распространения волн по интерфейсу FC72/СМ1.0сСт в импульсном (слева) и квазигармоническом (справа) режимах возбуждения. Счетчик времени запускался с началом соответствующего возбуждающего сигнала.

Анализ колебаний интерфейса, вызванных распространением ГКВ, проводился в двух вертикальных сечениях в правой половине кюветы, как показано на Рис. 2.2.1б. Цифровые видеозаписи эволюции профиля границы раздела обрабатывались в программе ImageJ. С помощью этой программы синтезировались волновые формы (ВФ)  $Y(t)$ , то есть зависимости

вертикальной компоненты колебаний границы раздела от времени, для двух координат  $x=r$  и  $x=l$ . Длительность окна сбора данных  $T_{acq}$  для импульсного метода была установлена на максимум, что позволило избежать записи отражений волн от краев кюветы.

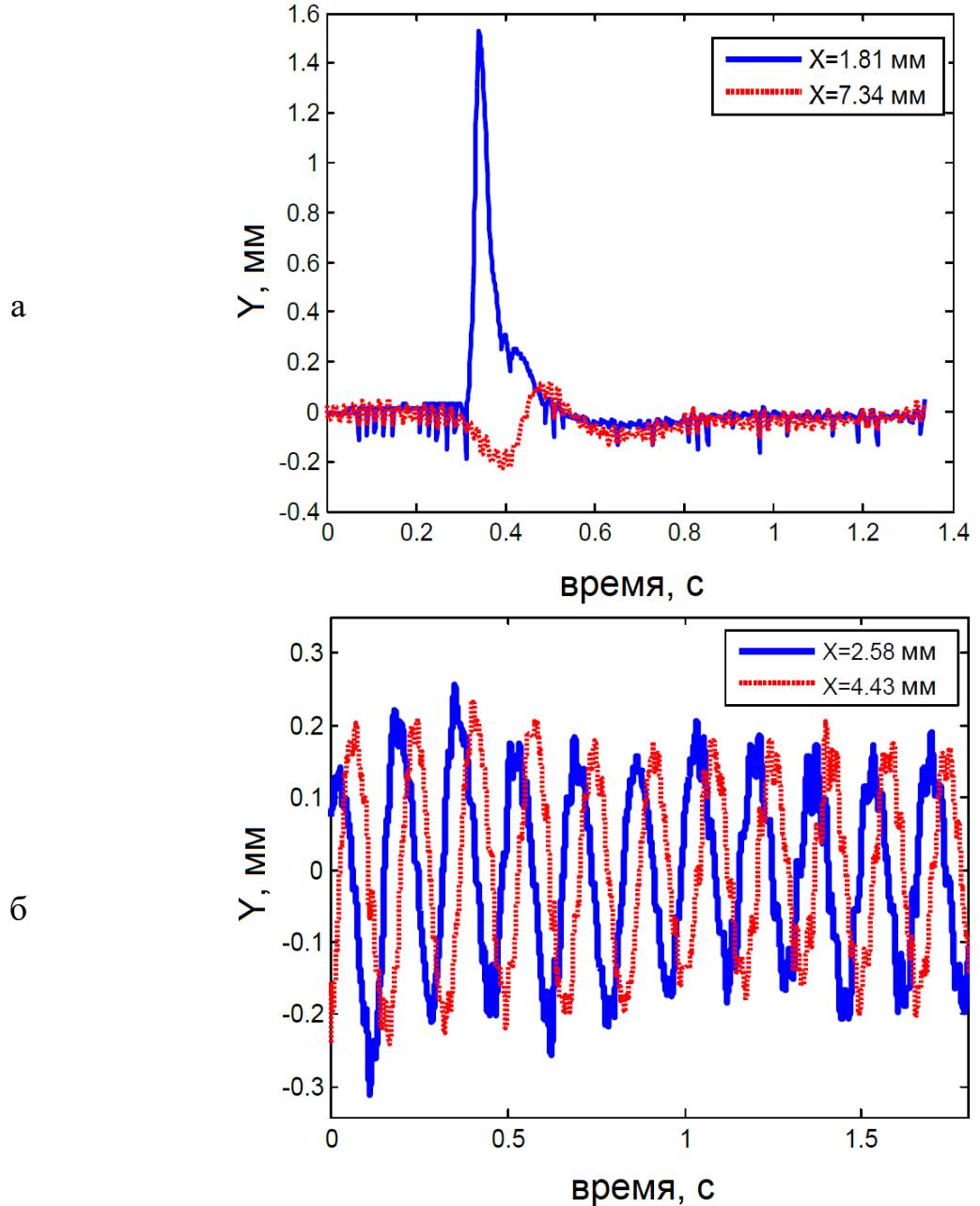


Рис. 2.2.3. ВФ, полученные на двух расстояниях для пары жидкостей FC70/CM1.5сСт в условиях микрогравитации. Применена компенсация тренда волновых форм (медленные смещения границы раздела). а) – импульсный метод, б) – монохроматический метод для 6 Гц.

Эксперименты, требующие условий микрогравитации, проводились на борту самолета-лаборатории CNES Zero-G Airbus A310, во время его полетов по параболической траектории. Каждый полет по параболе обладал фазой свободного падения длительностью около 22 секунд. Это не исключало присутствия остаточного ускорения, но его самая большая проекция всегда была нормальна к полу салона самолета и не превышала величину  $0.05g$  (ее направление совпадает с осью  $Y$  на Рис. 2.2.1б).

Все замеры и тесты проводились в первые несколько секунд после наступления условий микрогравитации, когда поверхность раздела жидкостей всё еще оставалась в целом горизонтальной, относительно ровной, подвергаясь лишь небольшому вертикальному смещению в виде наклона как целого. При этом координаты  $x$  точек поверхности в зоне наблюдения практически не изменяются. Относительные изменения  $x$  являются пренебрежимо малыми по сравнению с расстоянием  $|l-r|$ , составляющим величину порядка нескольких миллиметров. И они намного меньше, чем отношение дрейфа  $y$ -координат к амплитудам капиллярных волн. Медленный вертикальный дрейф интерфейса в пределах окна сбора данных компенсировался с помощью простой процедуры обработки исходных данных. На Рис. 2.2.3 показаны характерные ВФ после такой процедуры для комбинации FC70/CM1.5сСт. Здесь  $t=0$  соответствует началу сбора данных. Шум, присутствующий на кривых Рис. 2.2.3 был вызван небольшими вибрациями камеры на ее опоре во время полета. Типичные частоты этих колебаний находились между 35-50 Гц и потому выпадали из полосы анализа, верхнее значение которой не превышало 25 Гц.

Пример частотной зависимости разности фаз  $\Delta\Phi_{lr}$  между точками измерений, полученной с помощью импульсного метода для пары FC70/CM1.5сСт в условиях микрогравитации, показан на Рис. 2.2.4. Эта зависимость построена с использованием ВФ, представленных на Рис. 2.2.3а. Далее эти данные были использованы для получения пар  $V_i$  vs.  $\omega_i$ . При этом из всей полосы частот, которая при частоте кадров  $F_R=600$  fps формально

распространяется от  $1/T_{acq}$  до 300 Гц, выбирался поддиапазон с наиболее корректными и надежными данными. Из данных, представленных на Рис. 2.2.4, видно, что для частот выше 20-25 Гц ошибки в измерениях фазы критически нарастают, что объясняется монотонным уменьшением амплитуд соответствующих гармонических компонент. С учетом этого выбор оправданного в данных условиях диапазона частот, обеспечивающего создание подмножества корректных и информативных данных, был основан на минимизации ошибки в

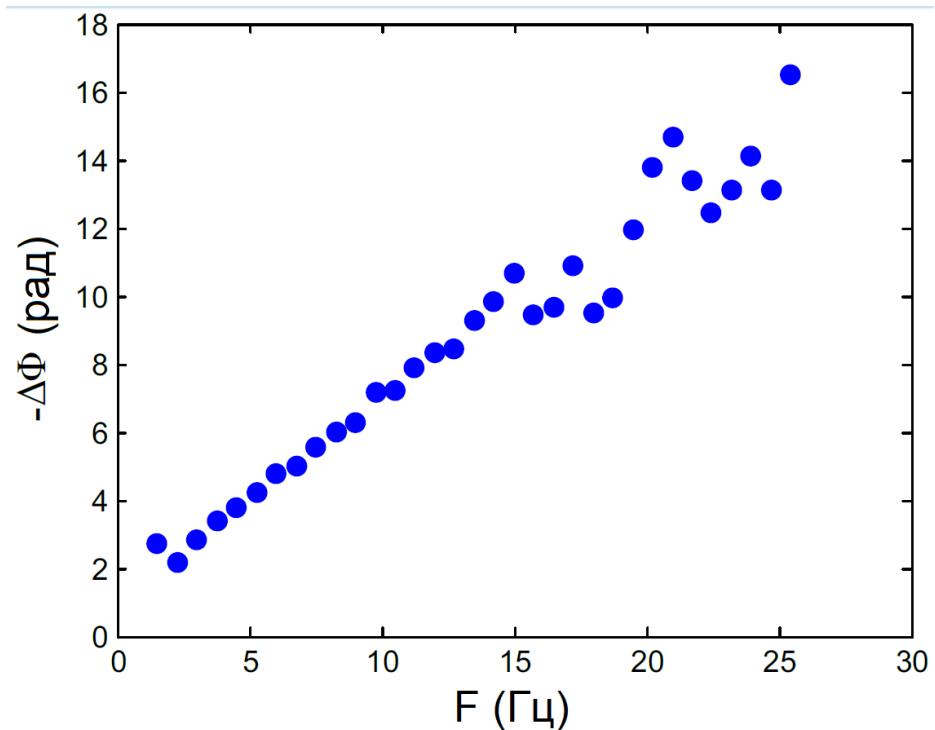


Рис. 2.2.4. Частотная зависимость разности фаз между точками измерения, полученная импульсным методом для пары жидкостей FC70/CM1.5сСт в условиях микрогравитации.

величине коэффициента  $b_1$  в уравнении (2.1.2). Коэффициент определения регрессии (коэффициент детерминации  $R^2$ ) также используется для проверки измерений. В случае достаточно большого значения вязкости жидкости (FC70/1.5сСт) исключение высокочастотного диапазона из множества полученных точек также дает возможность использовать дисперсионное

соотношение в форме (2.1.2), а не в полной форме (2.1.1). В заключение измеренные зависимости  $V(\omega)$  сравнивались с теоретическими для данных жидкостей и для расчетных значений  $\sigma$  в соответствии с (2.1.2). При этом для заданного множества  $k$  пары  $[V_i, \omega_i]$  находятся из (2.1.2) параметрическим образом.

Для проверки предложенного импульсного метода были выполнены сравнительные измерения с использованием альтернативного метода. В нем для каждого заданного значения частоты модуляции  $\omega_i$  возбуждаются квазипериодические капиллярные волны. Как и в случае импульсного возбуждения при обработке видео строится пара ВФ в двух сечениях (см. пример таких ВФ на Рис. 2.2.3а. Длины возбуждаемых цугов волн были того же порядка, что и длина кюветы.

Фазы микрогравитации на параболе ( $\approx 20$  с) было достаточно для получения данных сразу во всем выбранном диапазоне частот в импульсном режиме возбуждения капиллярных волн или данных для одной частоты  $\omega_i$  в квазигармоническом режиме. В тоже время последний имеет то важное преимущество перед импульсным режимом, что в нем амплитуда возбуждаемой синусоидальной компоненты частотой  $\omega_i$ : больше, а значит и точность для каждой точки  $V(\omega_i)$  как правило выше. Частотный диапазон измерений для обоих режимов был установлен от 5 до 20 Гц, т.к. в этом диапазоне можно и надежно регистрировать динамику волн и сравнивать результаты, полученные обоими методами.

### **§2.3. Результаты измерений коэффициента межфазного натяжения, полученные в условиях нормальной гравитации**

Целью первой серии экспериментов, проведенных при нормальном значении силы тяжести и температуре окружающей среды  $20^{\circ}\text{C}$ , была проверка работоспособности и эффективности обоих методов: импульсного и квазигармонического. Для этого была использована пара жидкостей FC72/1cSt с низким значением КМФН  $\sigma$ .

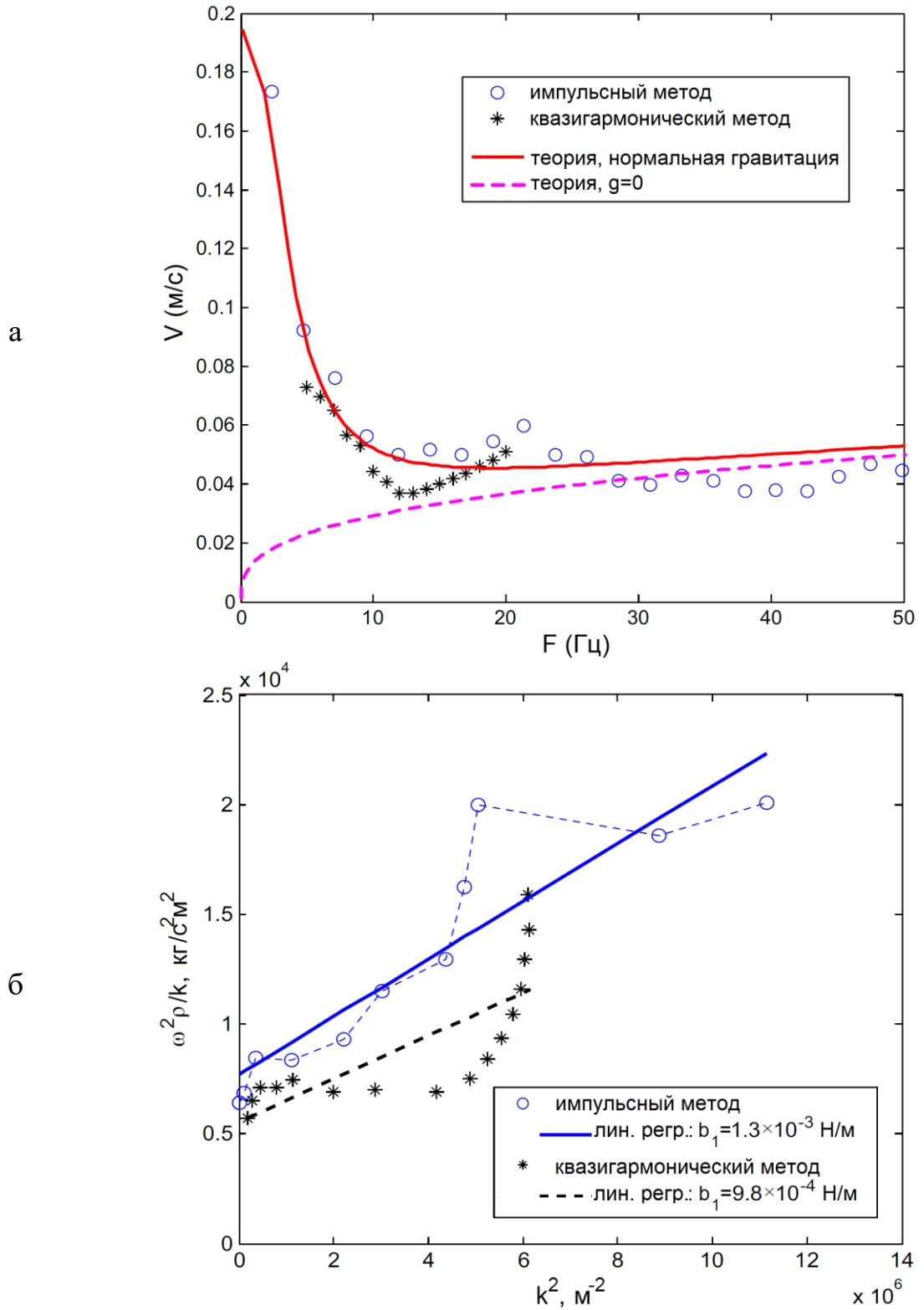


Рис. 2.3.1. Результаты измерений для пары жидкостей FC72/СМ 1.0сСт при нормальной гравитации и температуре 20°C. а) – Дисперсия фазовой скорости. Кружки - эксперимент, импульсный метод, звездочки - эксперимент, квазигармонический метод. Сплошная линия - теория при

нормальной гравитации, пунктирная линия - теория при невесомости, для построения теоретических зависимостей взято значение  $\sigma=1.3\cdot10^{-3}$  Н/м. б) – экспериментальные зависимости  $\omega^2(\rho_1+\rho_2)/k$  от  $k^2$  (точки) и линейные регрессии (прямые линии).

Результаты соответствующих измерений представлены на Рис. 2.3.1. Частотная зависимость скорости ГКВ показана на Рис. 2.3.1а для обоих методов. На низких частотах, в соответствии с (2.1.1), гравитационный член ( $\sim g$ ), преобладая над капиллярным ( $\sim \sigma$ ), определяет поведение дисперсии ГКВ таким образом, что скорость ГКВ  $V(\omega)$  с ростом частоты убывает. Напротив, на высоких частотах влияние межфазного натяжения становится основным и, соответственно, скорость ГКВ возрастает с ростом частоты. Наблюдающееся увеличение разброса экспериментальных данных с ростом частоты объясняется возрастанием затухания у высокочастотных компонент спектра.

Основываясь на экспериментальных данных для зависимостей  $V(\omega)$ , представленных на Рис. 2.3.1а, на Рис. 2.3.1б построены массивы точек, определяемые с помощью выражения (2.1.2). Значения КМФН для каждого из методов были затем получены как коэффициенты линейной регрессии соответствующих массивов. С целью минимизации результирующей ошибки в получаемом значении  $\sigma$ , вызванную сильным разбросом данных на высоких частотах, верхнее значение диапазона частот, в котором брались данные для вычислений в импульсном методе, было ограничено 25 Гц. Это допустимо, поскольку слагаемым с вязкостью в общем выражении (2.1.1) можно пренебречь на частотах по меньшей мере, до 50 Гц.

Полученные двумя методами значения КМФН составили  $\sigma_p=(1.3\pm0.2)\cdot10^{-3}$  Н/м и  $\sigma_{CW}=(9.8\pm2.2)\cdot10^{-4}$  Н/м для импульсного и квазигармонического методов соответственно. Как видно, численные значения, полученные обоими методами, оказались достаточно близкими. Однако относительные ошибки измерений составили соответственно 15% и 22%, что может быть

пригодно в качестве оценочных значений, но вряд ли приемлемо в качестве результата измерений.

Из Рис. 2.3.1б видно, что зависимость, полученная квазигармоническим методом, далека от прямой линии (критерий  $R^2$  равен всего 0.59). И хотя для импульсного метода этот коэффициент больше ( $R^2=0.82$ ), но, скорее всего, это случайность, поскольку и для данных этого метода характерен значительный разброс. Таким образом, на основе данных, полученных либо тем, либо другим методом в условиях нормальной гравитации, невозможно получить надежную линейную зависимость при вычислениях КМФН  $\sigma$ . Это связано с преобладанием гравитационного слагаемого над капиллярным в (2.1.1), а значит, и с низкой точностью оценки  $\sigma$  с помощью (2.1.2).

На Рис. 2.3.1а теоретические зависимости при значении КМФН равном  $\sigma=1.3 \cdot 10^{-3}$  Н/м даны сплошной линией для условий нормальной гравитации и пунктирной - для условий микрогравитации. Они показывают, что влияние межфазного натяжения начинает проявляться на частотах выше  $\approx 20$  Гц, где две кривые сближаются. Однако и в этом более высоком диапазоне частот оба метода снова не дают надежных оценок  $\sigma$  из-за повышенной диссипации волн и, следовательно, их низких амплитуд, обуславливающих большие неточности в данных. Следовательно, предложенный метод измерений малых значений КМФН  $\sigma$  лучше всего должен себя проявлять в условиях микрогравитации.

## §2.4. Результаты измерений малых значений коэффициента межфазного натяжения, полученные в условиях микрогравитации

Эксперименты в условиях микрогравитации проводились для обеих комбинаций жидкостей. На Рис. 2.4.1 показаны результаты для пары жидкостей FC70/СМ1.5сСт, а на Рис. 2.2.3 - изображения ВФ для этого случая.

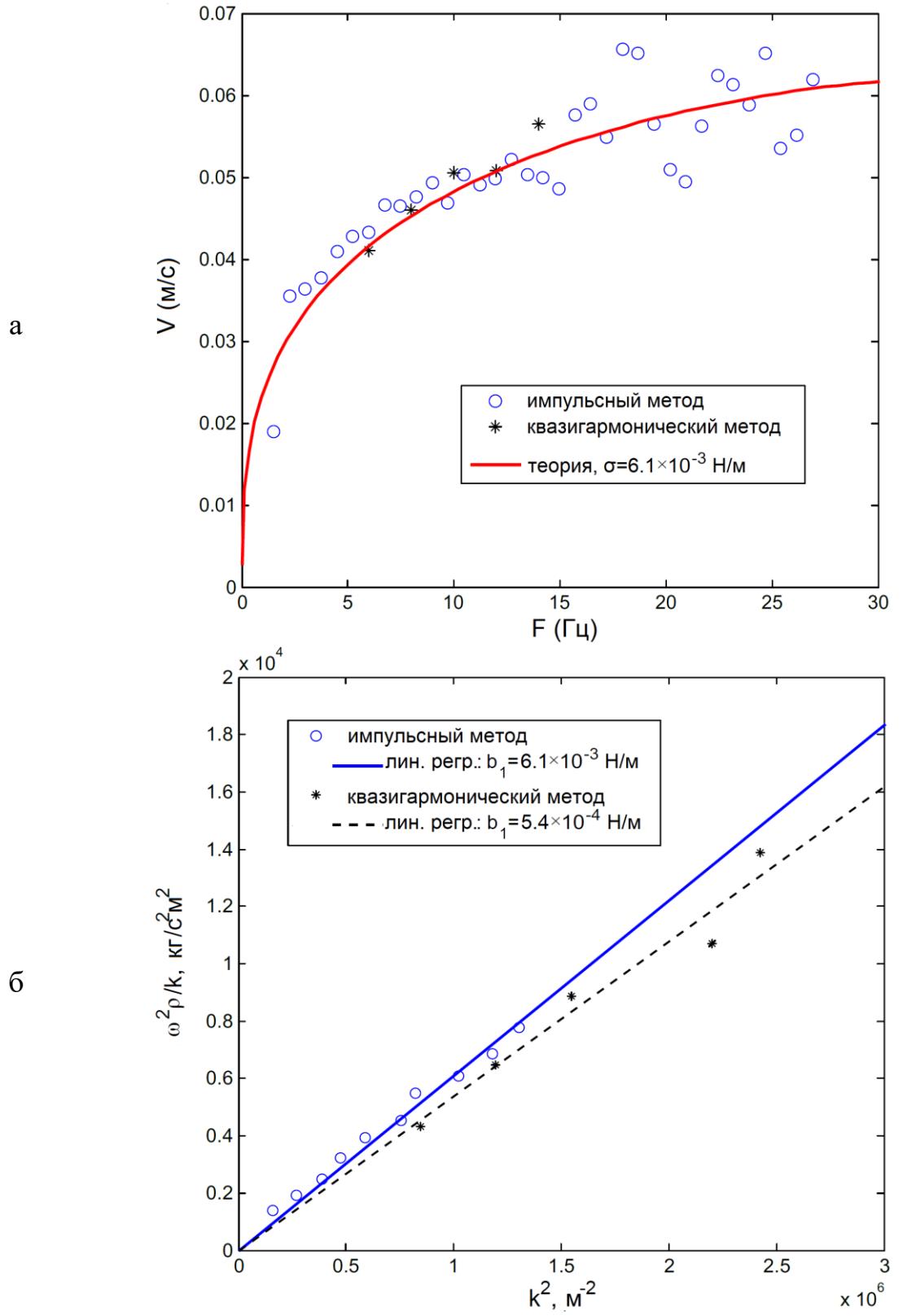


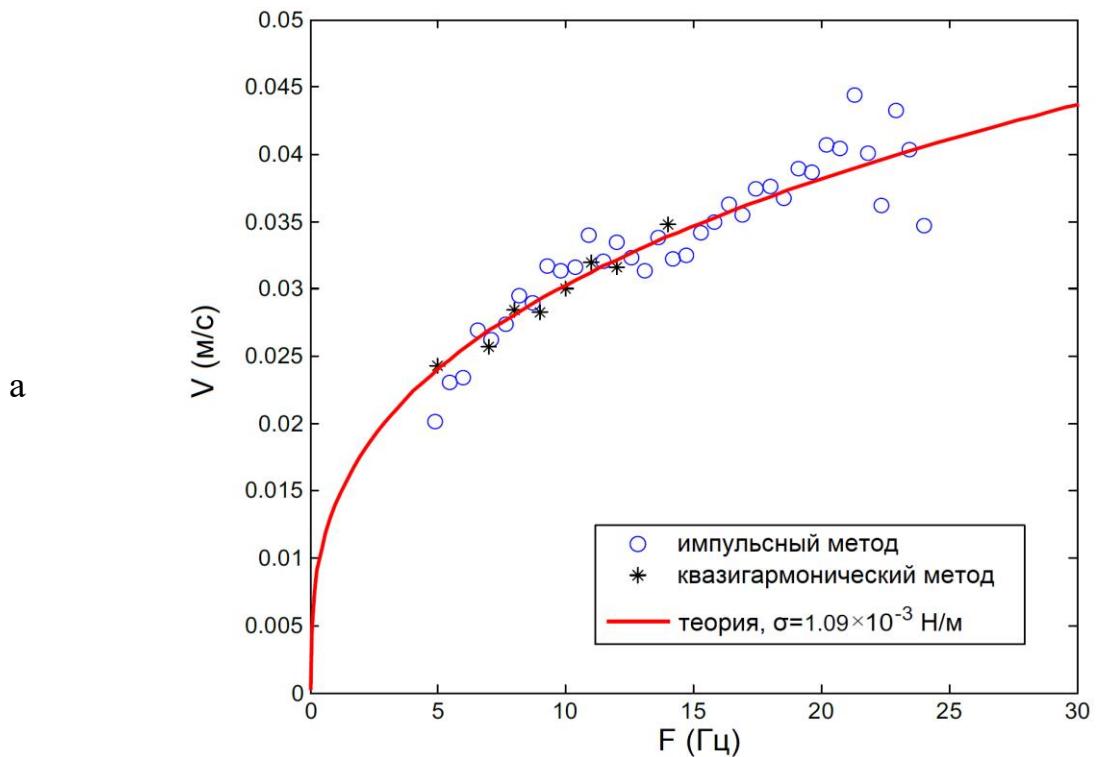
Рис. 2.4.1. Результаты измерений для пары жидкостей FC70/CM1.5сСт, полученные в условиях микрогравитации. а) – Дисперсия фазовой скорости: точки – экспериментальные данные, линии – теоретическая зависимость. б) – экспериментальные зависимости  $\omega^2(\rho_1+\rho_2)/k$  от  $k^2$  (точки) и их линейные регрессии (прямые линии).

Как и ранее для условий нормальной гравитации, из полученного импульсным методом в условиях микрогравитации массива данных для фазовой скорости  $V(\omega)$  (Рис. 2.4.1а) были взяты десять последовательных пар  $[\omega_i, V_i]$  в низкочастотной области для получения регрессионного представления, показанного на Рис. 2.4.1б. Анализ данных, полученных импульсным способом, показывает, что свободный член  $b_0$  в выражении (2.1.2), представляющий собой остаточную гравитацию в кабине, статистически незначим, а значит, силами гравитации в рассматриваемом случае действительно можно пренебречь. Полагая  $b_0=0$ , получаем, что в регрессии участвует только слагаемое с  $b_1$ .

Для импульсного режима на Рис. 2.4.1б сплошной линией показана линейная аппроксимация с коэффициентом, равным  $\sigma_p=(6.1\pm0.3)\cdot10^{-3}$  Н/м,  $R^2=0.98$ . Пунктирная линия соответствует линейной аппроксимации для квазигармонического режима с  $\sigma_{CW}=(5.4\pm0.67)\cdot10^{-3}$  Н/м при  $R^2=0.95$ . Относительные ошибки составляют 5% и 12% для данных, полученных импульсным и квазигармоническим методами соответственно. Как видно, в данном случае результаты, полученные обоими методами в пределах указанных ошибок близки друг к другу. Кроме того, полученные значения КМФН  $\sigma$  схожи со значением КМФН, равным  $\sigma=5.53\cdot10^{-3}$  Н/м и приведенным в работе ([40] Someya and Munakata, 2005) для близкой по свойствам комбинации FC70/CM2cСт. Сплошной линией на Рис. 2.4.1а показана теоретическая зависимость  $V(\omega)$ , построенная по уравнению (2.1.1) при значении  $\sigma=6.1\cdot10^{-3}$  Н/м с учетом вязкостей, которая демонстрирует соответствие с данными экспериментов. Более того, для частот выше 15 Гц, где значение слагаемого с вязкостью в (2.1.1) становится уже существенным, зависимость  $V(\omega)$  хорошо ложится на экспериментальные данные, что подтверждает корректность использования данного значения параметра  $\sigma=6.1\cdot10^{-3}$  Н/м в этих моделях.

Результаты измерений для FC72/CM1.0cСт представлены на Рис. 2.4.2. Из-за меньшей вязкости и, следовательно, меньшей диссипации в этих

жидкостях, разброс значений фазовой скорости для импульсного режима на более высоких частотах (см. Рис. 2.4.2a) меньше, чем для предыдущей пары жидкостей. Следовательно, более широкий (т.е. захватывающий более высокие частоты) набор данных может быть использован для построения регрессии, как показано на Рис. 2.4.2б. Для первых 27 точек данных из набора, представленных на Рис. 2.4.2a коэффициент  $b_1$  обладает минимальным отклонением. Для данных, полученных в импульсном режиме, линейная регрессия дает значение КМФН  $\sigma_p=(1.09\pm 0.02)\cdot 10^{-3}$  Н/м с коэффициентом  $R^2=0.94$ . Для данных, полученных в квазигармоническом режиме имеем  $\sigma_{CW}=(1.1\pm 0.1)\cdot 10^{-3}$  Н/м, и в пределах своих погрешностей оба значения, как видно, практически совпадают. Относительные погрешности полученных значений КМФН составляют 2% и 9% для импульсного и квазигармонического режимов, соответственно.



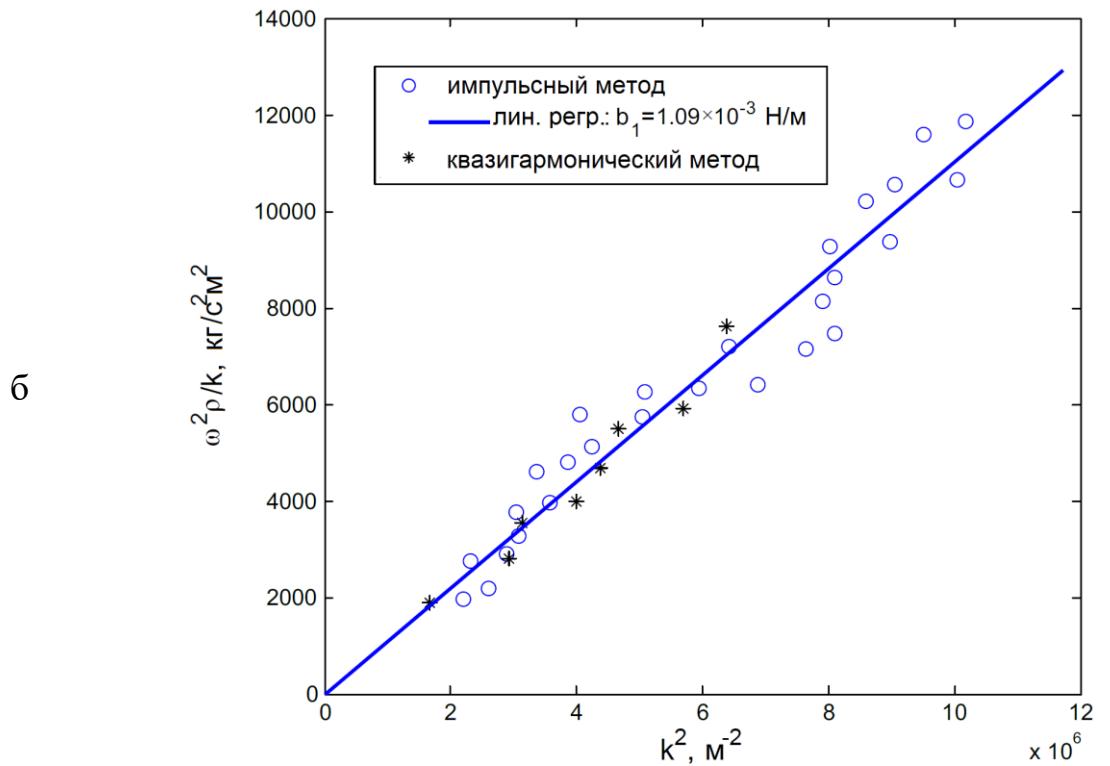


Рис. 2.4.2. Результаты измерений для пары жидкостей FC72/CM1.0сСт, полученные в условиях микрогравитации. а) – Дисперсия фазовой скорости: точки - экспериментальные данные, линии - теоретическая зависимость. б) – экспериментальные зависимости  $\omega^2(\rho_1+\rho_2)/k$  от  $k^2$  (точки) и их линейные регрессии (прямые линии).

Регрессия снова была выполнена при  $b_0=0$ , поскольку, как было установлено, величиной этого параметра можно пренебречь и в этом случае.

Сплошной линией на Рис. 2.4.2а в соответствии с (2.1.1) отображена теоретическая зависимость фазовой скорости при  $\sigma=1.09 \cdot 10^{-3}$  Н/м. Следует отметить, что хотя слагаемое с вязкостью в (2.1.1) и становится доминирующим с ростом частоты, но для этой пары жидкостей им можно полностью пренебречь в расчетах, поскольку в рассматриваемой полосе частот оно очень малое. Полученные в работе ([41] Ward, 2018) результаты измерений дали для этой пары жидкостей значение  $\sigma=7.34 \cdot 10^{-4}$  Н/м. Таким образом, соответствие друг другу результатов, полученных обоими методами, а также их согласие с данными из литературы подтверждают

работоспособность предложенного импульсного метода определения КМФН и преимущества его использования в условиях микрогравитации.

Необходимо отметить, что, как правило, импульсный метод дает больший разброс данных  $V(\omega)$  по сравнению с квазигармоническим методом. И как упоминалось ранее, причиной тому служат гораздо меньшие амплитуды спектральных компонент по сравнению с квазигармоническим режимом возбуждения КГВ. Однако несмотря на то, что каждое отдельно взятое измерение в квазигармоническом режиме является более точным, из-за меньшего числа данных результирующая ошибка обычно оказывается больше ошибки импульсного режима.

Графики линейной регрессии, представленные на Рис. 2.4.1б и Рис. 2.4.2б для двух комбинаций жидкостей, демонстрируют разные отклонения экспериментальных точек от теоретических прямых. Индивидуальные отклонения сильнее для пары жидкостей FC72/1.0сСт. Это может быть объяснено более высокой неопределенностью ослабления скорости капиллярной волны при малых значениях  $\sigma$ . Это можно объяснить более высокой степенью неопределенности измерений скорости капиллярной волны при таких значениях  $\sigma$ . Но, как уже было указано выше, в окончательном результате эти повышенные отклонения точек оказываются скомпенсированы их большим количеством, и в итоге это привело к еще большей относительной точности результата для второй пары жидкостей.

## Краткие выводы по результатам главы 2

Предложен и экспериментально апробирован в условиях нормальной и микрогравитации метод определения малых значений КМФН несмешивающихся и БЖ, основанный на одноимпульсном широкополосном ультразвуковом возбуждении капиллярных волн на границе раздела жидкостей. Показано, что для пар жидкостей с очень малым значением КМФН его измерение с достаточно высокой точностью возможно только в условиях микрогравитации. Корректность результатов, даваемых

предлагаемым методом, подтверждена их совпадением (в пределах ошибок) с результатами измерений, полученных независимым методом квазигармонического возбуждения капиллярных волн, а также соответствием результатам, опубликованным другими авторами при использовании альтернативных подходов.

На основании полученных результатов сделан вывод о том, что данный метод выгодно отличается от известных ранее повышенной точностью и скоростью измерения, а также достаточной простотой в реализации, применимостью к бинарным жидкостям, имеющим малые значения КМФН, для которых известные методы имеют серьезные ограничения в использовании. Отмечается особое значение импульсного метода для экспериментов, проводимых в условиях микрогравитации, так как использование широкополосного возбуждения существенно уменьшает требуемое количество измерительных процедур и, следовательно, уменьшает временные и стоимостные затраты по сравнению с альтернативными методами.

## **ГЛАВА 3. СЕПАРИРОВАНИЕ ЭРИТРОЦИТОВ И ПЛАЗМЫ КРОВИ ЧЕЛОВЕКА С ПОМОЩЬЮ СТОЯЧИХ ПОВЕРХНОСТНЫХ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛН**

### **Введение к главе 3. Ультразвуковая манипуляция частицами в жидкости (обзор)**

Технологии "лаборатории на чипах" (*lab-on-a-chip*) [42] - микросистем, например, для био- и химического анализа жидких растворов, оказываются все более востребованными, открывая новые возможности для исследователей в различных областях науки и развития нанотехнологий. Одну из критически важных ролей в технологиях *lab-on-a-chip* играет потребность манипулировать в пространстве и времени различными частицами, находящимися в жидкости. В ряде недавних работ показано, что использование манипуляции частицами актуально для таких различных областей, как генный транспорт [43], клиническая медицина [44], транспорт лекарств [45], пищевые технологии [46].

К настоящему времени предложено и разработано несколько различных методов реализации "лаборатории на чипах": с применением прецизионного конструирования [47], 3D-печати [48], микро- и нанофлюидики [49]. Наряду с развитием известных, продолжаются поиски новых подходов, в частности, в начале 2000-х была высказана идея создания "лабораторий на чипах" с акустическим "приводом" [50]. Благодаря бесконтактности и дистанционности воздействия акустические технологии имеют свои преимущества в управлении положением частиц. К настоящему времени эта идея реализовалась в виде нового класса акустоэлектронных устройств, предназначенных для проведения в реальном времени химических и биологических автоматизированных анализов жидких растворов с очень малым (порядка микро- и нанолитров) объемом, а также оперативного синтеза таких растворов.

Особая роль в развитии и применении акустических технологий в *lab-on-a-chip* принадлежит устройствам с использованием поверхностных акустических волн (ПАВ), как наиболее совместимыми с другими функциональными компонентами и технологиями микро- и наноэлектроники. ПАВ ультразвуковых частот уже используются в опытных образцах лабораторий на чипах, однако, ряд особенностей воздействия ПАВ на каплю жидкости, находящуюся на подложке и содержащую различные частицы, требует дальнейшего изучения. К таким, в частности, можно отнести механизмы структурирующего воздействия ПАВ на коллоидные растворы, нанесенные на акустическую подложку. Изучение такого воздействия представляет интерес для развития ряда инновационных технологий. Одна из них связана с созданием периодических структур микро- и наночастиц, получаемых из коллоидных растворов и проявляющих свойства фотонных кристаллов. Подобные микро- и наноструктуры находят все большее применение в оптических устройствах, элементах хемосенсоров, в качестве гибких защитных слоев для светодиодов и пр. В работе [51] экспериментально и с помощью компьютерного моделирования показано, что с помощью ПАВ возможно управление ансамблем коллоидных частиц, а разработанная физическая модель адекватно описывает такие параметры формируемых структур, как пространственный период и интенсивность акустического воздействия на частицы в зависимости от соотношения плотностей частиц и растворителя.

Другая область возможного применения эффекта структуризации коллоидных частиц в поле ПАВ связана с перспективами разработки компьютеризированных устройств анализа крови в технологии *lab-on-a-chip*. На биомедицинское значение эффекта ультразвуковой структуризации впервые было указано в работе [52], а затем более детально изучено в [53]. В этих работах, а также в более поздней работе [54] было показано, что красные кровяные тельца в кровеносных сосудах под действием радиационной силы ультразвука могут концентрироваться (агрегироваться) в

узлах объемных стоячих акустических волн, т.е. на расстоянии половины длины акустической волны. С точки зрения возможной закупорки сосудов такое воздействие объемных акустических волн на эритроциты может рассматриваться как негативное. Вместе с тем, принимая во внимание, что число эритроцитов в кубическом миллиметре крови является одним из важнейших параметров среди показателей анализа крови, в ультразвуковом сепарировании эритроцитов есть позитивный момент. Как физическая основа это может быть использовано при разработке новых методов подсчета плотности эритроцитов в медицинской диагностике крови. В этом смысле важно также отметить, что еще одним преимуществом акустических методов применительно к диагностике крови является возможность выполнять подобные анализы без использования каких-либо химических реагентов [54].

Важную стимулирующую роль в постановке и проведении описываемых далее экспериментов сыграли результаты, полученные в работах О.В. Руденко с соавторами [51, 55]. В этих работах разработаны аналитическая и численная модели, применимые к описанию основных особенностей пространственно-временной эволюции частиц коллоидного раствора, находящегося на подложке в поле стоячих ПАВ. При этом учитывались сила взаимодействия частицы с подложкой, сила, обусловленная взаимодействием с растворителем, зависящая от вязкости и соотношения плотностей частицы и растворителя, результирующая консервативных сил со стороны других частиц, капиллярные силы, ответственные за взаимодействие частицы с межфазной границей раствор–воздух, и наконец, силы, действующие на частицы со стороны акустического поля. Согласно этим моделям движение частиц в жидкости с качественной точки зрения определяется в основном конкуренцией радиационной силы, увеличивающей скорость частиц по отношению к потоку, и силы Стокса, уменьшающей ее. В свою очередь, радиационная сила имеет две составляющие: горизонтальную и вертикальную. В рассматриваемых условиях направление горизонтальной составляющей радиационной силы определяется только горизонтальной

координатой, зависимость от которой является периодической. По этой причине в поле стоячих ПАВ горизонтальная компонента радиационной силы характеризуется периодическим чередованием ее направления, а также максимумов и минимумов амплитуды. Вследствие этого находящиеся в жидкости частицы в основном сепарируются в областях минимумов амплитуды. Поскольку радиационные силы квадратичны по отношению к амплитуде акустического поля, период пространственной структуры, формируемой под их воздействием в горизонтальном направлении, должен быть равен половине длины акустической волны. Вертикальная составляющая радиационной силы, не завися от горизонтальной координаты, способна собирать взвешенные частицы на свободной поверхности жидкости. Это приводит к тому, что при уменьшении толщины слоя жидкости (например, вследствие испарения) частицы оседают на поверхности подложки, сохраняя картину сепарирования. Следует также отметить еще два важных результата этих работ. Во-первых, если длина акустической волны намного превышает размер частиц, то они увлекаются потоком жидкости независимо от их плотности, и радиационной силой, действующей на них, можно пренебречь. Во-вторых, эффективность сепарирования взвешенных в жидкости частиц зависит от отношения плотностей частицы и окружающей ее среды: чем ближе это отношение к единице, тем ниже эффективность сепарирования. Отсюда следует, что *a priori* возможность акустического сепарирования эритроцитов и плазмы крови не очевидна, так как их плотность мало отличается от плотности плазмы крови (см. далее). По этой причине экспериментальная проверка такой возможности представляется необходимой и оправданной как с научной, так и с практической точек зрения.

### **§3.1. Экспериментальная установка и методика измерений**

Эксперименты по сепарирующему действию ПАВ на коллоидные растворы проводились на подложке YZ-среза монокристалла ниобата лития с

размерами  $60 \times 12 \times 3$  мм (см. Рис. 3.1.1). На противоположных концах подложки находилась пара встречно-штыревых преобразователей (ВШП) с рабочими частотами 14.40 МГц либо 28.55 МГц (пары 2–3 и 1–4 соответственно). Каждый ВШП имел по восемь пар электродов с апертурой 8 мм. Период электродов ВШП на 14.40 МГц составлял  $120.0 \pm 0.5$  мкм, их ширина  $57.0 \pm 0.5$  мкм. Для частоты 28.55 МГц период электродов был равен  $60.0 \pm 0.5$  мкм, а их ширина  $27.0 \pm 0.5$  мкм.

Стоячая ПАВ создавалась за счет подачи на ВШП с одинаковой рабочей частотой ВЧ-сигнала, формируемого последовательно включенными генератором сигналов ВЧ и усилителем мощности УЗ-11. Регистрация результатов осуществлялась цифровым фотоаппаратом, объектив которого был сопряжен с окуляром микроскопа, направленного на поверхность подложки. Пространственная калибровка получаемых изображений проводилась по известным размерам электродов ВШП. Наряду с фотоизображениями были получены видеозаписи, позволяющие проследить времененную динамику сепарирования. С целью минимизации потерь энергии ПАВ за счет преобразования в другие типы волн исследуемая жидкость накрывалась покровным стеклом, что обеспечивало концентрацию акустической энергии в тонком приповерхностном слое, толщина которого не превышала несколько сотен микрометров, за счет отражения ультразвука от стекла с большим акустическим импедансом, чем у жидкости.

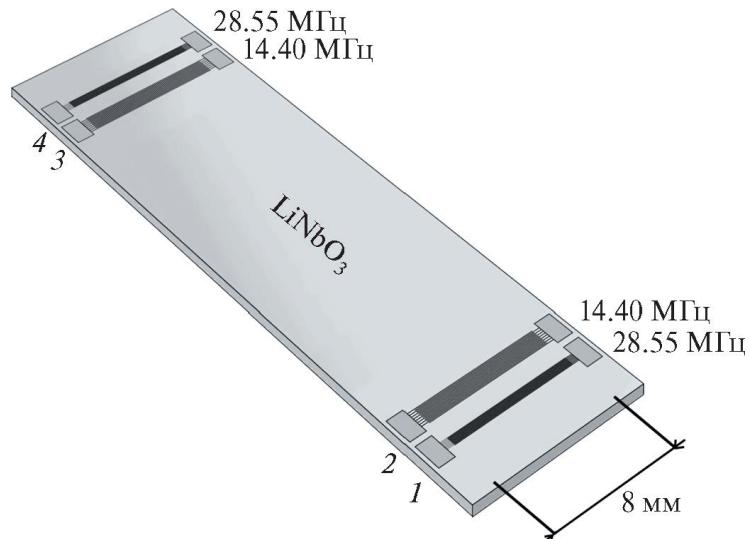


Рис. 3.1.1. Подложка из ниобата лития с нанесенными на ее поверхность ВШП.

### §3.2. Сепарирование частиц карбоната кальция в поле стоячих ПАВ

На первом этапе с целью проверки применимости и корректности используемой методики эксперимента, аналогичной той, что применялась в [51] использовалась пара ВШП с рабочей частотой  $f=28.55$  МГц, а в качестве объекта – водный коллоидный раствор зубного порошка. Такой выбор обусловлен стандартизацией по ГОСТ 5972-77 составляющих его частиц карбоната кальция: их размер должен быть порядка 20 мкм, а плотность равняться 2.5 г/см<sup>3</sup>. Объем капли раствора, наносимого на подложку, составлял несколько микролитров. Характерное время формирования картины сепарирования частиц карбоната кальция (Рис. 3.2.1) после начала возбуждения ПАВ находилось в пределах 1–2 секунд.

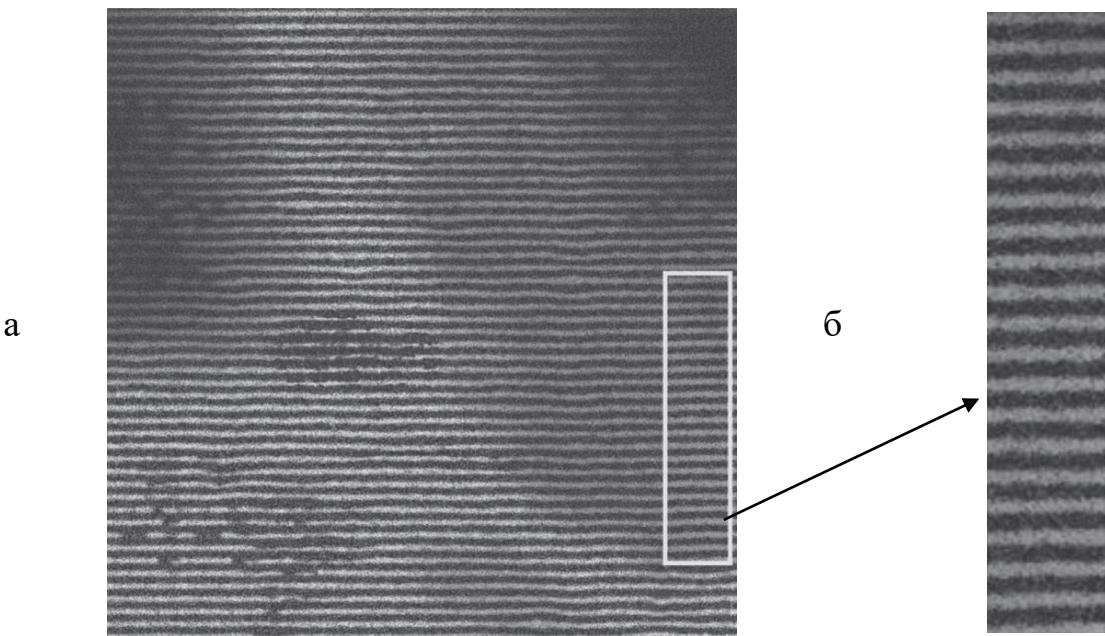


Рис. 3.2.1. а) Фотоизображение сепарирования частиц карбоната кальция в воде, образованной в поле стоячих ПАВ частотой 28.55 МГц. Белым прямоугольником выделена область численного анализа, показанная на (б) в увеличенном масштабе.

Пространственно-регулярный характер и плоская форма темных и светлых полос образованной структуры хорошо соответствуют пространственной структуре поля стоячей ПАВ, излученной плоскими ВШП.

Измерения периода этой пространственной структуры проводились на основе цифровой обработки полученного изображения. Изначально цветное изображение преобразовывалось в градации серого, затем выделялась область с малой неравномерностью фона (обозначена белым прямоугольником на Рис. 3.2.1а и в более крупном масштабе на Рис. 3.2.1б). Далее выполнялась операция усреднения по всем

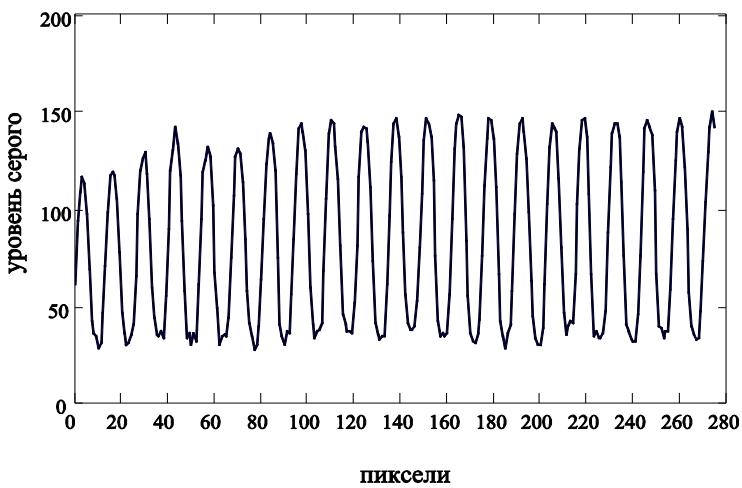


Рис. 3.2.2. Усредненный по всем столбцам изображения (Рис. 3.2.16) уровень серого в зависимости от поперечной по отношению к полосам структуры координаты.

столбцам выделенного фрагмента, позволяющая уменьшить влияние шумов изображения и повысить точность измерений. Результат представлен на Рис. 3.2.2, где изображена усредненная зависимость уровня серого от поперечной по отношению к полосам структуры координаты.

Средняя величина расстояния  $L$  между максимумами или минимумами этой зависимости характеризует среднюю величину пространственного периода образованной структуры.

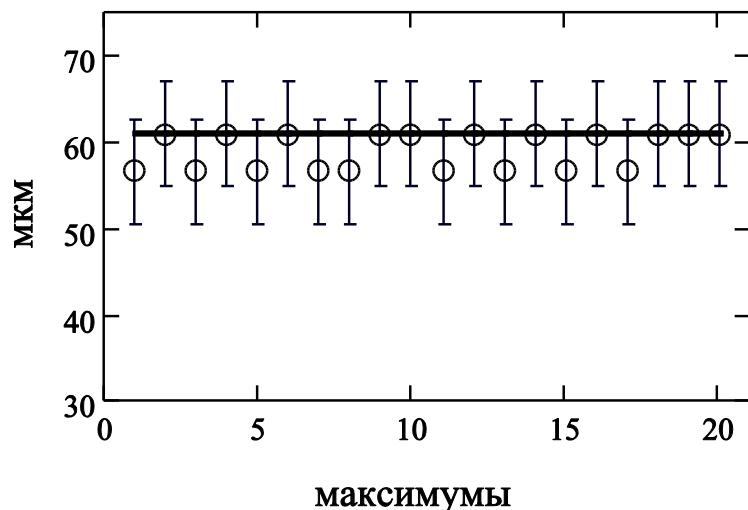


Рис. 3.2.3. Расстояние между максимумами на Рис. 3.2.2 в зависимости от номера максимума; для наглядности сплошной линией показано справочное значение  $\lambda/2=61$  мкм для ПАВ частотой 28.55 МГц на свободной поверхности ниобата лития.

Для определенности измерение величины  $L$  велось по максимумам, что с учетом калибровки по известным размерам ВШП дало для нее значение  $L=(59\pm6)$  мкм (Рис. 3.2.3).

В пределах точности измерений это значение равно половине длины волны стоячей ПАВ  $\lambda/2=61$  мкм<sup>1</sup> на частоте 28.55 МГц. Этот результат количественно соответствует теоретическим выводам [51] и качественно (в смысле соответствия структуры сепарирования коллоидных частиц структуре вызвавшего ее акустического поля) — экспериментальным результатам указанной работы. Это дает основание сделать вывод о применимости и корректности используемой методики эксперимента. В заключение этого раздела отметим, что при повышенной мощности ПАВ в образце возникали квазистационарные течения, разрушающие упорядоченную структуру.

### **§3.3. Сепарирование эритроцитов и плазмы крови человека в поле стоячих ПАВ**

В экспериментах второго этапа в качестве объекта использовалась кровь человека. Как известно, кровь состоит из жидкой плазмы и взвешенных в ней форменных элементов. У взрослого здорового человека объем плазмы составляет 60% цельной крови, а форменных элементов крови — соответственно 40%. Плотность плазмы составляет от 1.025 до 1.029 г/см<sup>3</sup>. Форменные элементы крови представлены эритроцитами, тромбоцитами и лейкоцитами. При сравнимых размерах количество эритроцитов в единице объема на четыре порядка превышает суммарное количество остальных двух форменных элементов крови, поэтому можно считать, что в данных

экспериментах форменные элементы представлены главным образом эритроцитами. Диаметр эритроцита человека составляет 6.2—8.2 мкм, толщина 2 мкм, объем 76—110 мкм<sup>3</sup>, плотность 1.090 г/см<sup>3</sup> [56]. Поскольку плотность эритроцитов лишь ненамного превышает плотность окружающей их плазмы, а их размер в несколько раз меньше размера частиц карбоната кальция, то в соответствии с упомянутой выше теоретической моделью эффективность сепарирования эритроцитов и плазмы крови, очевидно, должна быть заметно меньше, чем частиц карбоната кальция в воде при прочих равных условиях. Для повышения эффективности сепарирования эритроцитов можно уменьшить отношение длины волны ПАВ к характерному размеру эритроцитов за счет повышения частоты ПАВ. Однако такое решение при ограниченной мощности используемого источника возбуждения ВШП, как показали тесты на частотах 14.40 и 28.55 МГц, не позволяет сохранить уровень интенсивности ПАВ, необходимый для уверенного наблюдения эффекта сепарирования эритроцитов. Объясняется это тем, что повышение частоты акустических волн сопровождается увеличением их затухания, а при распространении ПАВ по подложке со слоем крови поглощение существенно возрастает еще и потому, что вязкость плазмы крови примерно в 5 раз выше, чем вязкость воды. В результате, в качестве оправдавшего себя компромисса, частота ПАВ в экспериментах по сепарированию эритроцитов была выбрана равной 14.40 МГц. Это понизило затухание ПАВ и вдвое по сравнению с первым этапом увеличило ее длину волны и, как следствие, ожидаемый период пространственный структуры.

Благодаря такой оптимизации условий эксперимента наблюдение сепарирования эритроцитов крови человека в поле плоских стоячих ПАВ частотой 14.40 МГц оказалось возможным, что демонстрирует Рис. 3.3.1а, а также тот факт, что при высыхании плазмы и последующем удалении покровного стекла образованная структура частично сохраняется на подложке.

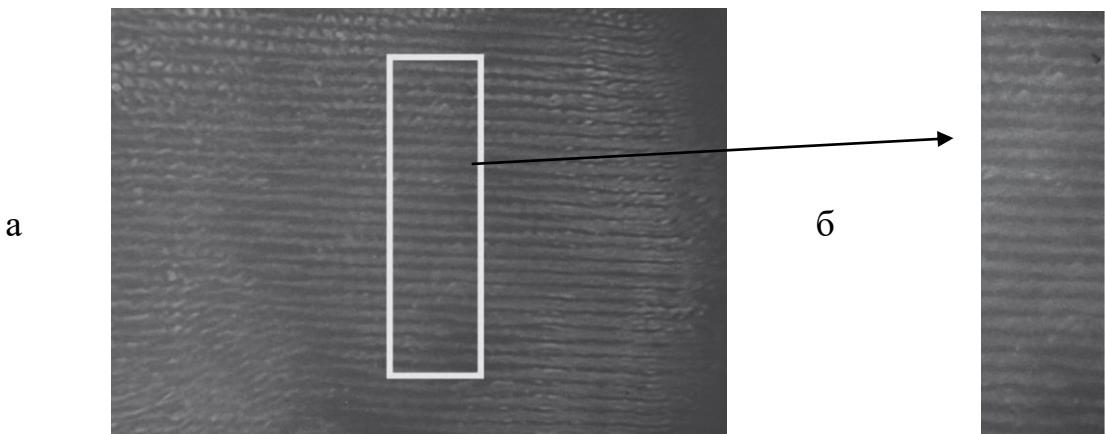


Рис. 3.3.1. а) Фотоизображение пространственной структуры, образованной эритроцитами крови человека в поле стоячих ПАВ частотой 14.40 МГц. Белым прямоугольником выделена область численного анализа, показанная на (б) в увеличенном масштабе.

В результате выполнения аналогичной предыдущему случаю процедуры измерения для средней величины пространственного периода структуры (см. Рис. 3.3.2) получено значение  $L_{bl}=(115\pm12)$  мкм (Рис. 3.3.3), которое ожидаемо вдвое больше, чем измеренное на первом этапе, и соответствует половине длины волны ПАВ на частоте 14.40 МГц.

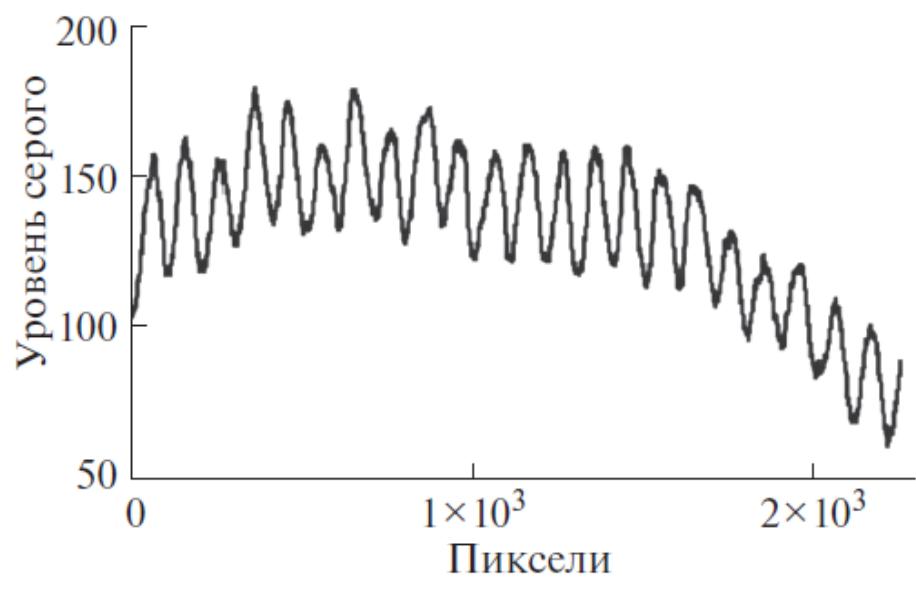


Рис. 3.3.2. Усредненный по всем столбцам изображения (Рис. 3.3.1б) уровень серого в зависимости от поперечной по отношению к полосам структуры координаты.

В то же время, как и следовало ожидать из выводов теории, эффект сепарирования эритроцитов выражен гораздо слабее, чем в случае сепарирования частиц карбоната кальция из водного коллоидного раствора.

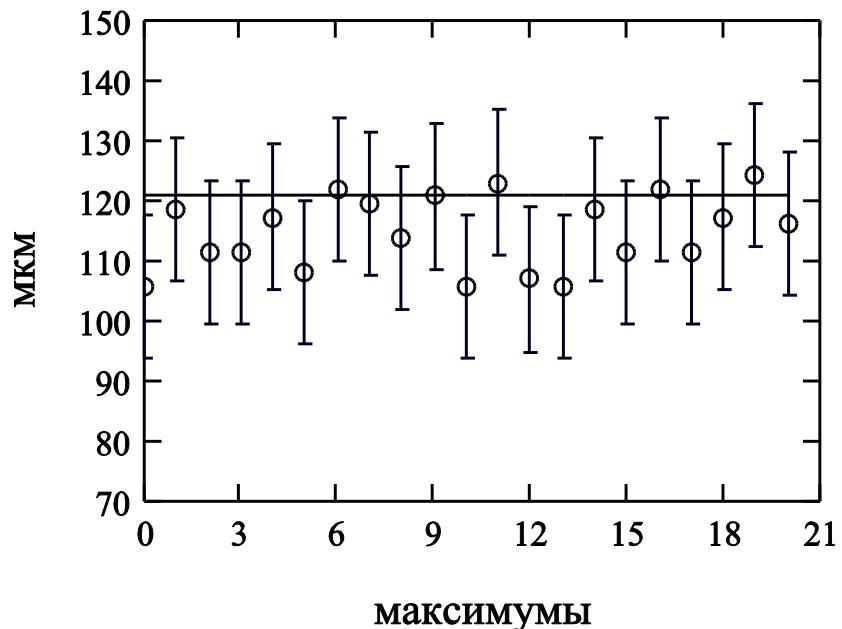


Рис. 3.3.3. Расстояние между максимумами на Рис. 3.3.2 в зависимости от номера максимума, для наглядности сплошной линией показано справочное значение  $\lambda/2=115$  мкм для ПАВ частотой 14.40 МГц на свободной поверхности ниобата лития.

Вследствие неполного сепарирования эритроцитов, а также их большей прозрачности по сравнению с частицами карбоната кальция, изображения на Рис. 3.3.1 характеризуются большим уровнем шумов и существенно меньшей разностью между максимальным и минимальным уровнем серого. Так, если для Рис. 3.2.1 характерное значение такого перепада составляет величину порядка 100 (Рис. 3.2.2), то для Рис. 3.3.1 оно порядка 50 (Рис. 3.3.2).

Как показали дополнительные эксперименты, сепарирование эритроцитов крови оказалась возможной не только в поле плоских стоячих ПАВ, но и в полях других конфигураций. Например, если на подложку

ниобата лития нанести небольшую каплю крови, которая под покровным стеклом примет форму круга, то в акустическом тракте ПАВ возникают акустические линзы, образованные искривленными границами жидкой среды. В этом случае изначально плоские встречные пучки ПАВ, распространяясь через эти линзы, преобразуются в сфокусированные. На Рис. 3.3.4 показан пример такой фокусировки, визуализированной за счет сепарирования эритроцитов, обусловленной соответствующей структурой поля встречных сфокусированных пучков ПАВ.

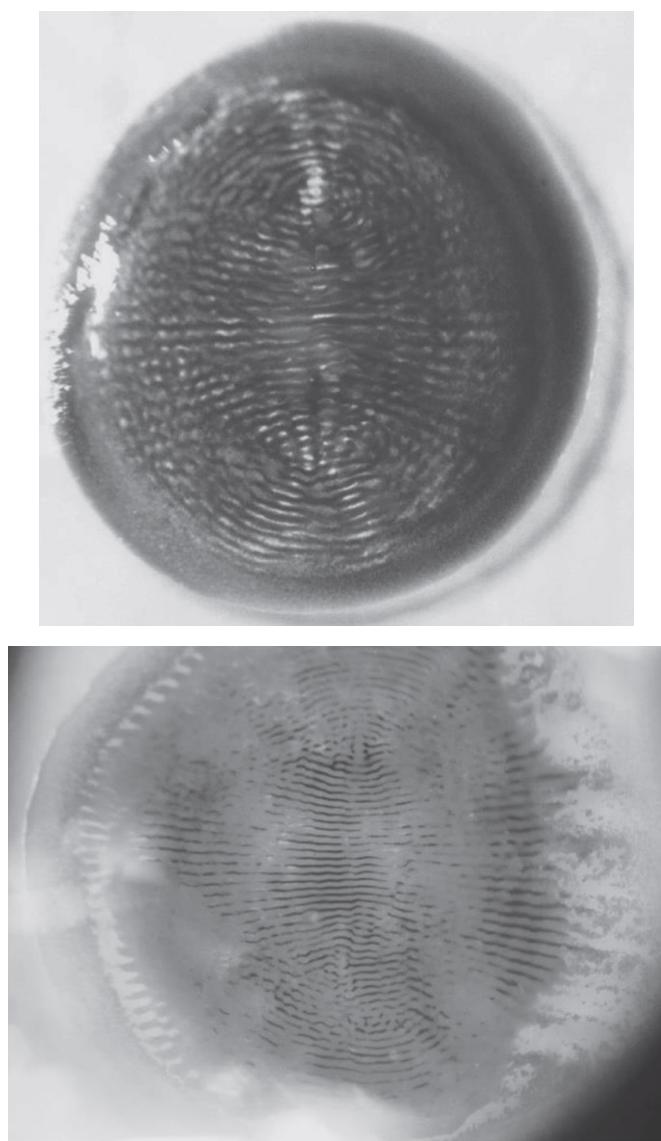


Рис. 3.3.4. Сепарирование эритроцитов внутри капли крови в поле встречных пучков сфокусированных ПАВ.

Таким образом, экспериментально установлена возможность акустического управления пространственным распределением сепарированных эритроцитов за счет выбора соответствующей геометрии ПАВ.

### **Краткие выводы по результатам главы 3**

Реализован эффект сепарирования эритроцитов крови в поле стоячих ПАВ. Выполнен сравнительный анализ экспериментальных результатов по ультразвуковому сепарированию эритроцитов в образце крови и частиц карбоната кальция в водном коллоидном растворе. Выявлены характерные общие особенности и различия в процессе и результате сепарирования примененных в экспериментах сред в поле стоячих ПАВ. Установлено качественное соответствие полученных результатов теоретической и численной моделям, развитым О.В. Руденко с соавторами в работе 2010 г., а также полученным ими экспериментальным результатам по сепарированию частиц кремнезема в поле стоячих ПАВ.

Полученные в данной работе результаты могут быть полезны в качестве физической основы перспективной в рамках идеологии "*lab-on-a-chip*" технологии бесконтактного разделения форменных элементов крови. В свою очередь, такая технология может быть использована при создании устройств для выполнения автоматизированного анализа (в том числе дистанционного) параметров крови, а также с целью, например, определения концентрации частиц в растворах.

## **ГЛАВА 4. РЕГИСТРАЦИЯ НАНОЧАСТИЦ, ОБРАЗОВАННЫХ ПРИ УЛЬТРАЗВУКОВОЙ АБЛЯЦИИ В ВОДЕ ГИПСОВОГО ФАНТОМА ПОЧЕЧНЫХ КАМНЕЙ**

### **Введение к главе 4. Получение наночастиц с помощью абляции твердых тел в жидкости (обзор)**

Несмотря на то, что к настоящему времени разработано достаточно много методов получения наночастиц, интерес к подобного рода процессам не ослабевает вследствие все возрастающего спроса на наночастицы как объекта научных исследований [57], так и со стороны индустрии [58]. С физической точки зрения одним из наиболее развитых методов получения наночастиц является лазерная абляция твердых тел в жидкости [59, 60]. Сохраняющаяся актуальность данного процесса обусловлена возможностью получения с его помощью наночастиц заданных размеров и свойств из различных материалов, в том числе и в тех случаях, когда использование других методов затруднительно [61].

Для данной работы важно также то обстоятельство, что на распределение абляционных частиц по размерам оказывает влияние локальное микроскопическое давление паров жидкости, которое в процессе лазерной абляции достигает сотен атмосфер [61]. Давления такого порядка величины (и более) локально могут достигаться в высокоинтенсивных ультразвуковых пучках, а также имеют место при стимулированной мощным ультразвуком кавитации. В последнем случае в результате схлопывания кавитационных пузырьков возникают ударные импульсы большой амплитуды и высокоскоростные микроскопические течения, обладающие значительной разрушающей способностью [62]. В тоже время использование этих ультразвуковых кавитационных явлений, а также явления ультразвукового распыления позволяет синтезировать разнообразные наночастицы за счет химических реакций, индуцированных звуком в объеме с раствором реагентов [63]. Однако, подобные ультразвуковые методы не

всегда могут дать желаемый результат, в частности, из-за присутствия различных нежелательных примесей в виде поверхностно-активных веществ (ПАВ) в синтезированных наночастицах. В [64] предложен подход, позволяющий решить эту проблему для случая синтеза наночастиц алюминия без присутствия ПАВ и основанный на ультразвуковом облучении алюминиевых пленок нанометровой толщины, погруженных в ту или иную жидкость. Кроме того, как было показано в [65], при периодическом ( $\sim 200$  Гц) воздействии сфокусированных ультразвуковых импульсов с несущей частотой от 170 кГц до 800 кГц и амплитудой давления в фокусе порядка 6 МПа на фантомы почечных камней в воде происходит их фрагментация. При этом характерный размер фрагментов при увеличении несущей частоты уменьшается от нескольких миллиметров до долей миллиметра.

Сопоставление всех этих факторов позволило поставить задачу об экспериментальной проверке новой возможности образования наночастиц, при которой лазерный пучок в классической схеме лазерной абляции твердых тел в жидкости заменяется на высокоинтенсивный ультразвуковой пучок мегагерцового диапазона.

## §4.1. Экспериментальная установка и методика проведения экспериментов и измерений

Упрощенная схема экспериментов по ультразвуковой абляции, проводившихся в водном бассейне, представлена на Рис. 4.1.1а.

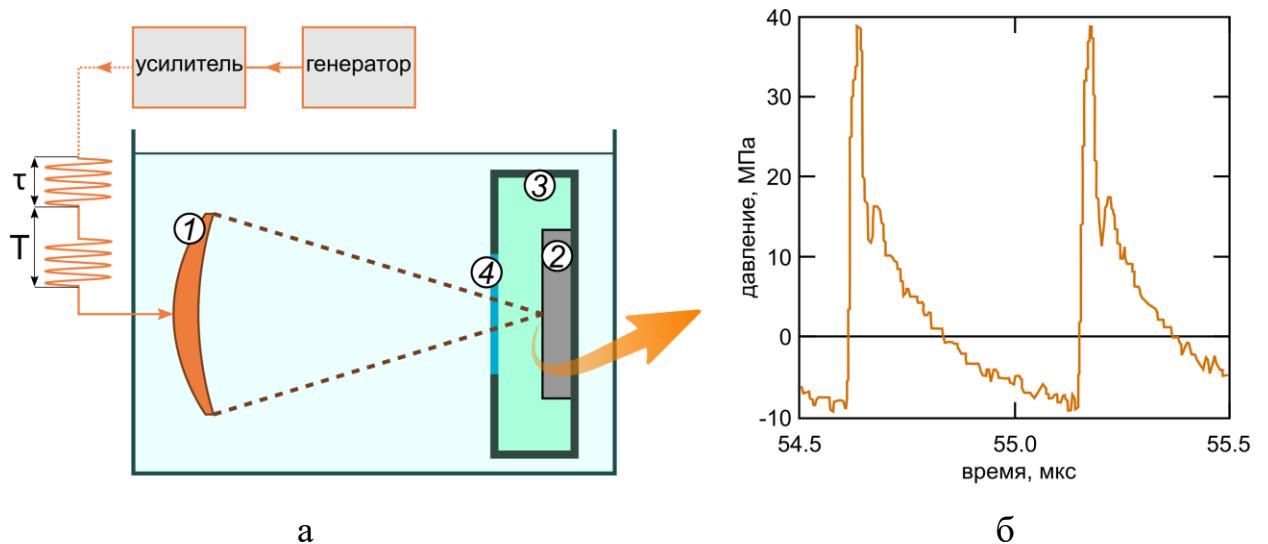


Рис. 4.1.1. а) – упрощенная схема эксперимента: 1 – сфокусированный пьезопреобразователь, 2 – твердотельный образец, 3 – герметично закрываемая кювета, 4 – звукопрозрачное окно. Tektronix AFG3102 – генератор сигналов произвольной формы, ОМ3500НF – каскад из трех последовательно включенных усилителей мощности<sup>2</sup>, последним из которых стоит усилитель мощности ОМ-Power 3500НF. Пунктирными линиями условно показана область, занимаемая ультразвуковым пучком. б) – временной профиль ультразвукового пучка, зарегистрированный на оси пучка на расстоянии 61 мм от излучателя (1) в точке максимума акустического давления.

Сфокусированный ультразвуковой пучок создавался пьезокерамическим элементом (1), имеющим форму сферического сегмента диаметром 28 мм и резонансную частоту 1.80 МГц. Электрический импеданс пьезоэлемента на

<sup>2</sup> на Рис. 1а показан только оконечный усилитель

этой частоте являлся чисто активным и был равен 22 Ом. Для согласования этого значения с выходным сопротивлением оконечного усилителя мощности, равного 50 Ом, использовалась стандартная Г-образная цепь (на Рис. 4.1.1а не показана). Ее применение позволило существенно увеличить эффективность преобразования электрической энергии в акустическую, что важно для успешной реализации цели данной работы. Возбуждение ультразвукового преобразователя осуществлялось импульсно-периодической последовательностью, создаваемой генератором Tektronix AFG 3102, и имевшей следующие параметры: несущая частота радиоимпульсов 1.80 МГц, длительность  $\sim 1$  мс, период следования  $T=5$  мс. Для создания высокоинтенсивного ультразвукового пучка эти радиоимпульсы последовательно усиливались с помощью трех усилителей мощности, при этом в качестве оконечного усилителя использовалась модель OM3500HF производства компании OM-POWER, имеющая выходную мощность до 3.5 кВт<sup>1</sup>. Длительность ультразвукового воздействия не превышала 3 минуты.

Измерения параметров ультразвукового поля при указанных значениях возбуждения проводились в воде без образца с помощью широкополосного (до 30 МГц) звукопрозрачного мембранныго PVDF-гидрофона GEC Marconi с диаметром пьезоактивной зоны 0.5 мм. Гидрофон закреплялся на позиционирующей системе Velmex Bislide, программно управляемой с помощью компьютера, что позволяло с высокой точностью сканировать акустическое поле по желаемой траектории. Результаты этих измерения показали, что фокальная перетяжка ультразвукового пучка расположена в области 57-70 мм от излучателя (1), ее диаметр (по первым нулям поперечного распределения акустического давления) составляет  $\sim 4$  мм. Временной профиль акустического давления, представленный на Рис. 4.1.1б, зарегистрирован в области фокальной перетяжки на оси сфокусированного ультразвукового пучка в точке, где перепад акустического давления максимален, а именно, на расстоянии 61 мм от излучателя (1). Видно, что данный временной профиль, будучи сильно нелинейным, имеет характерный

ударный участок, на котором акустическое давление за очень короткий (~30 нс) промежуток времени меняется от фазы разрежения с минимумом давления, равным -10 МПа, до фазы сжатия с максимумом давления, равным +40 МПа. Таким образом, суммарный перепад акустического давления составляет 50 МПа. Следует отметить, что такие большие значения перепадов акустического давления уже одного порядка с теми, что имеют место в современных промышленных литотриптерах, с помощью которых успешно дробят камни *in vivo* в организме человека.

Для экспериментов было изготовлено из одной большой заготовки несколько твердотельных образцов (2) необходимого размера, размещавшихся в фокальной области ультразвукового пучка. При фото- и видеорегистрации особенностей ультразвуковой абляции образцы фиксировались в центре крестообразного подвеса из капроновых нитей. Для сбора абляционных частиц твердотельный образец приклеивался к стенке герметично закрываемой и наполненной водой кюветы со звукопрозрачным окном из тонкой полиэтиленовой пленки (см. Рис. 4.1.1а). Это позволяло полученную после сеанса ультразвукового облучения взвесь абляционных частиц в воде без существенных потерь и искажений использовать для последующего инструментального анализа. По примеру [65-68], где для экспериментов по ультразвуковой фрагментации твердотельные образцы с заранее заданными параметрами изготавливались на основе гипсовых шпаклевок, в данной работе твердотельные образцы также изготавливались из сухой гипсовой смеси (шпатлевка фирмы "БОЛАРС", имеющей прочность на сжатие не менее 2.5 МПа, <http://www.bolars.ru>). Отметим, что как и в [65], перед проведением экспериментов по абляции и измерением параметров гипсовых образцов они были выдержаны в воде не менее 72 часов, необходимых для их дегазации. Измерения акустических параметров проводились для водонасыщенного и сухого состояний приготовленных образцов. В результате были получены<sup>2</sup> следующие значения параметров соответственно для "мокрого" и "сухого" состояний образцов: плотность 1540

кг/м<sup>3</sup> и 1230 кг/м<sup>3</sup>, скорость продольных акустических волн – 2290 м/с и 2390 м/с, скорость поперечных акустических волн – 1310 м/с и 1730 м/с. Полученные значения достаточно близки к данным, приведенным в [66-68] для твердотельных образцов из гипса.

Процесс образования и выноса в воду абляционных частиц регистрировался с помощью фото и видеосъемки. Анализ распределения абляционных частиц по размерам и массам производился с помощью лазерного анализатора размеров частиц Shimadzu SALD-7500 во всем диапазоне измерений этого прибора, т.е. от 7 нм до 800 нм. Для анализа из герметично закрываемой и до ультразвукового облучения наполненной дистиллированной водой кюветы с образцом брались две отдельно взятые с интервалом в 5 минут пробы. При этом в процессе измерений, выполнявшихся с интервалом в 30 сек, с помощью штатной для указанного анализатора мешалки производилось интенсивное перемешивание пробы с целью избавления от образовывающихся после ультразвукового воздействия крупных агломераций частиц, поскольку никаких поверхностно-активных веществ, препятствующих их образованию, не применялось. Процесс измерений заканчивался, когда регистрируемые распределения частиц переставали меняться со временем.

#### **§4.2. Результаты регистрации распределения наночастиц по размерам и массам, образованных в результате ультразвуковой абляции гипсового фантома почечных камней**

Как показывают визуальные наблюдения, фото и видеозаписи, выполненные с образцами, зафиксированными в воде на подвесе, импульсно-периодическое воздействие мощных радиоимпульсов ультразвука, сфокусированных на поверхность гипсового образца, приводит к ее интенсивному локальному разрушению за счет микровзрывов, регистрируемых в области фокусировки ультразвукового пучка в том числе и невооруженным глазом. Хотя выяснение механизма такого разрушения не

является предметом данной работы, тем не менее, можно отметить ряд важных факторов в пользу того, что наиболее вероятным механизмом разрушительного воздействия на поверхность твердотельного образца и, как одно из следствий, образованию наночастиц в данных условиях представляется ультразвуковая кавитация. Во-первых, оценка минимальной интенсивности в фокусе при приведенных выше параметрах ультразвукового пучка, дает величину порядка 450 Вт/см, что намного превосходит максимальное значение порога кавитации 10 Вт/см в воде для несущей частоты ультразвука 2 МГц по данным [69]. Возникновению кавитации в данных условиях способствует и аномально большая величина давления, зарегистрированная в фазе разряжения в области фокальной перетяжки ультразвукового пучка (- 10 МПа). Наконец, как было установлено в работе [70], в импульсном режиме при несущей частоте ультразвука 2 МГц и длительности импульсов в интервале от 0.03 мс до 10 мс уровень акустической кавитации в воде максимален при значении коэффициента заполнения от 10 до 30%. В нашей работе коэффициент заполнения, равный 20%, находится внутри этого интервала, что также свидетельствует в пользу развития акустической кавитации. Одной из характерных ее особенностей является *взрывной* характер схлопывания кавитационных пузырьков, сопровождающегося образованием ударных волн, распространяющихся в воде. Если, как в данном случае, коллапс пузырька происходит вблизи твердой поверхности, то его сферическая симметрия нарушается. Это вызывает образование микропотоков, которые в дополнение к ударной волне также воздействуют на поверхность, вызывая ее эрозию и, как логично предположить, выносят абляционные частицы из зоны ультразвукового воздействия. На Рис. 4.2.1а приведена фотография, иллюстрирующая физические процессы, наблюдаемые при ультразвуковой абляции, реализуемой в предложенной схеме, а на Рис. 4.2.1б - фотография абляционных частиц, полученная на оптическом микроскопе с увеличением x40.

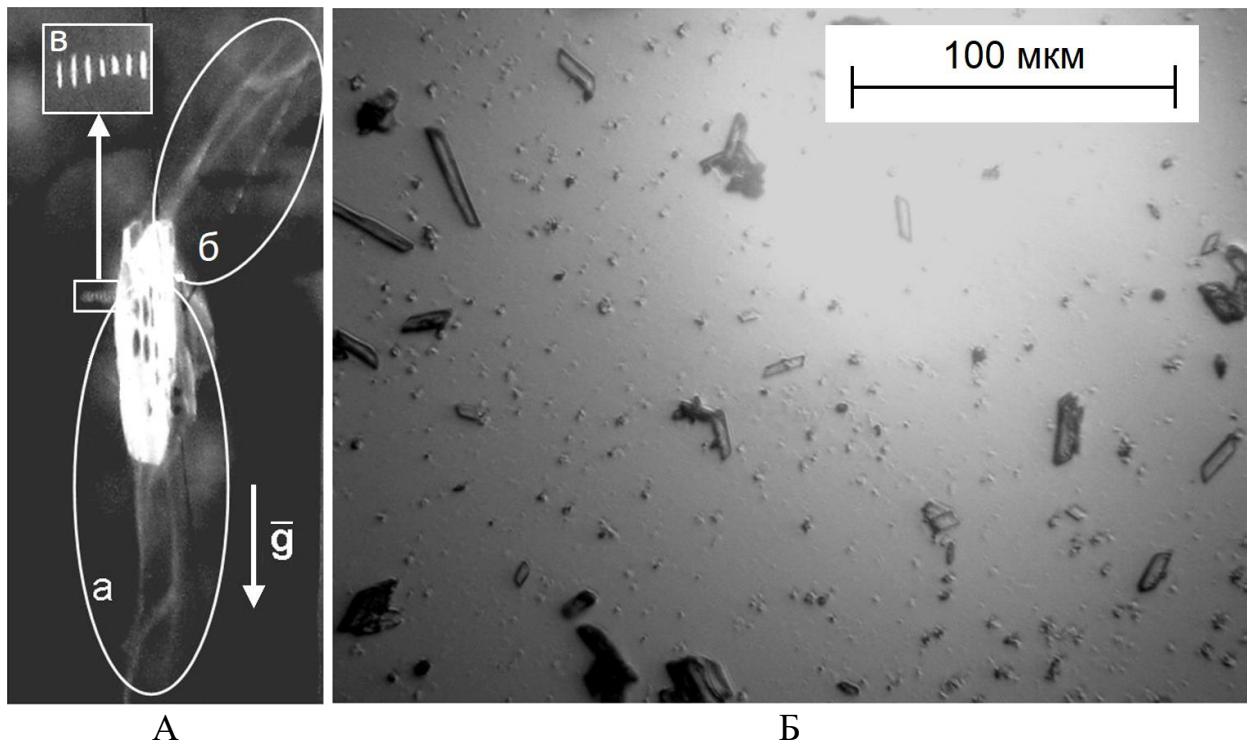
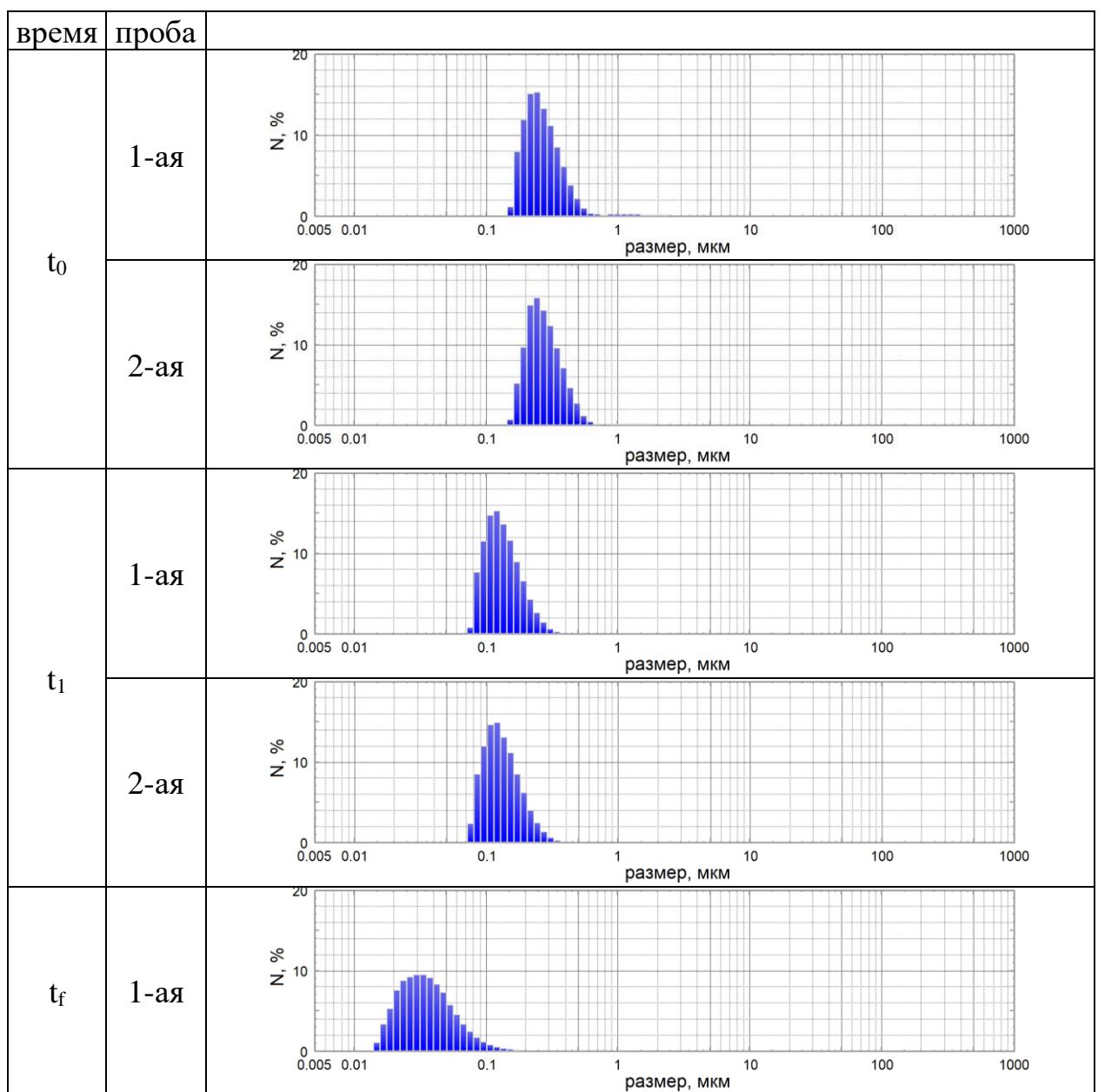


Рис. 4.2.1 А) Картина ультразвуковой абляции твердотельного гипсового образца 2, зафиксированного на подвесе из капроновых нитей. Взвеси абляционных частиц, выделенные овалами: а) – "облака" наиболее мелких частиц, дрейфующих в акустическом потоке к водной поверхности, б) – "облака" более крупных частиц, медленно оседающих на дно бассейна, в) – увеличенное изображение фокальной области сфокусированного ультразвукового пучка с наиболее мелкими частицами, захваченными в узлы стоячей ультразвуковой волны. F – вектор силы тяжести. Б) Фотография абляционных частиц, полученная на оптическом микроскопе с увеличением x40.

Как видно, взвесь абляционных частиц, вынесенных с поверхности образца 2 в воду в виде своеобразных "облаков" (см. Рис. 4.2.1а, области, выделенные овалами), увлекается образующимися акустическими потоками. Более крупные частицы дрейфуют в потоке в направлении дна бассейна (область, обозначенная на Рис. 4.2.1а, овалом (а)). Одновременно очень мелкие частицы, не опускаясь на дно под действием силы тяжести, дрейфуют

в акустических потоках, в том числе и к поверхности воды (область, обозначенная на Рис. 4.2.1а, овалом (б)). Часть таких очень мелких абляционных частиц за счет действия радиационных сил в стоячей ультразвуковой волне захватывается в ее узлах [51] и, тем самым, визуализирует ее фронты в области фокальной перетяжки (см. на Рис. 4.2.1а, область, обозначенную прямоугольником (в), представляющую собой увеличенное изображение области фокальной перетяжки). Такое поведение твердотельных абляционных частиц в воде служит качественным свидетельством того, что их размеры аномально малы.



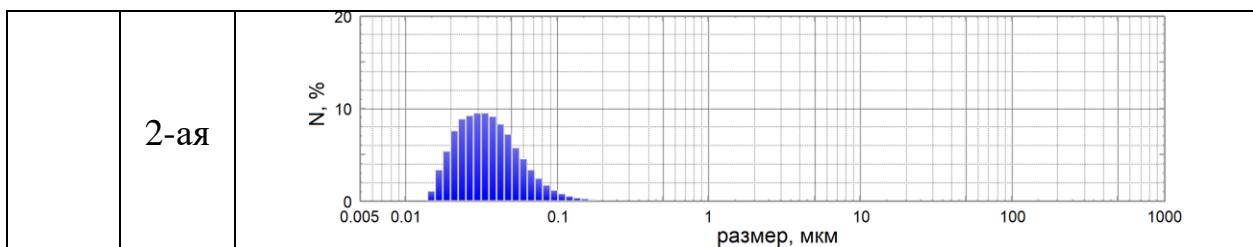
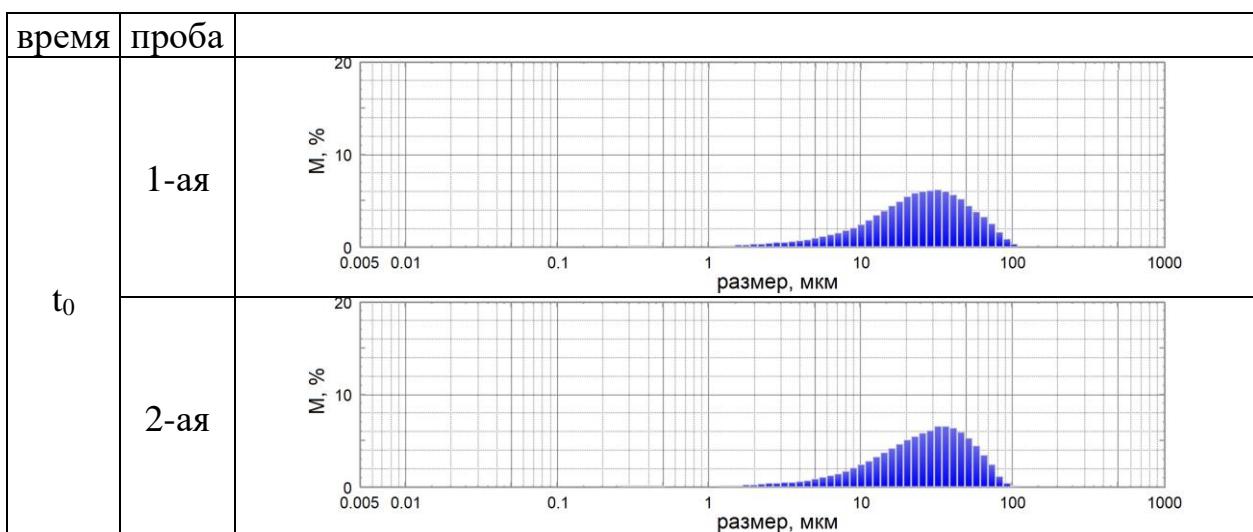


Рис. 4.2.2. Распределения абляционных частиц по размерам для 1-ой и 2-ой проб для разных моментов времени:  $t_0$  – начало анализа,  $t_1$  – промежуточное значение  $t_1=t_0+30$  с;  $t_f$  – время установления стационарного распределения.

Результаты количественного анализа распределения абляционных частиц по размерам и массам представлены в виде гистограмм на Рис. 4.2.2 и Рис. 4.2.3 соответственно. На обоих рисунках представлены результаты, независимо полученные для двух проб воды, содержащей продукты абляции для разных моментов времени:  $t_0$  - начальный момент времени,  $t_1$  - промежуточный момент времени и время установления стационарного распределения. Сравнительный анализ Рис. 4.2.2 и Рис. 4.2.3, показывает, что распределения, полученные для первой и второй проб, практически идентичны друг другу во все моменты времени, что важно и показательно, т.к. свидетельствует о



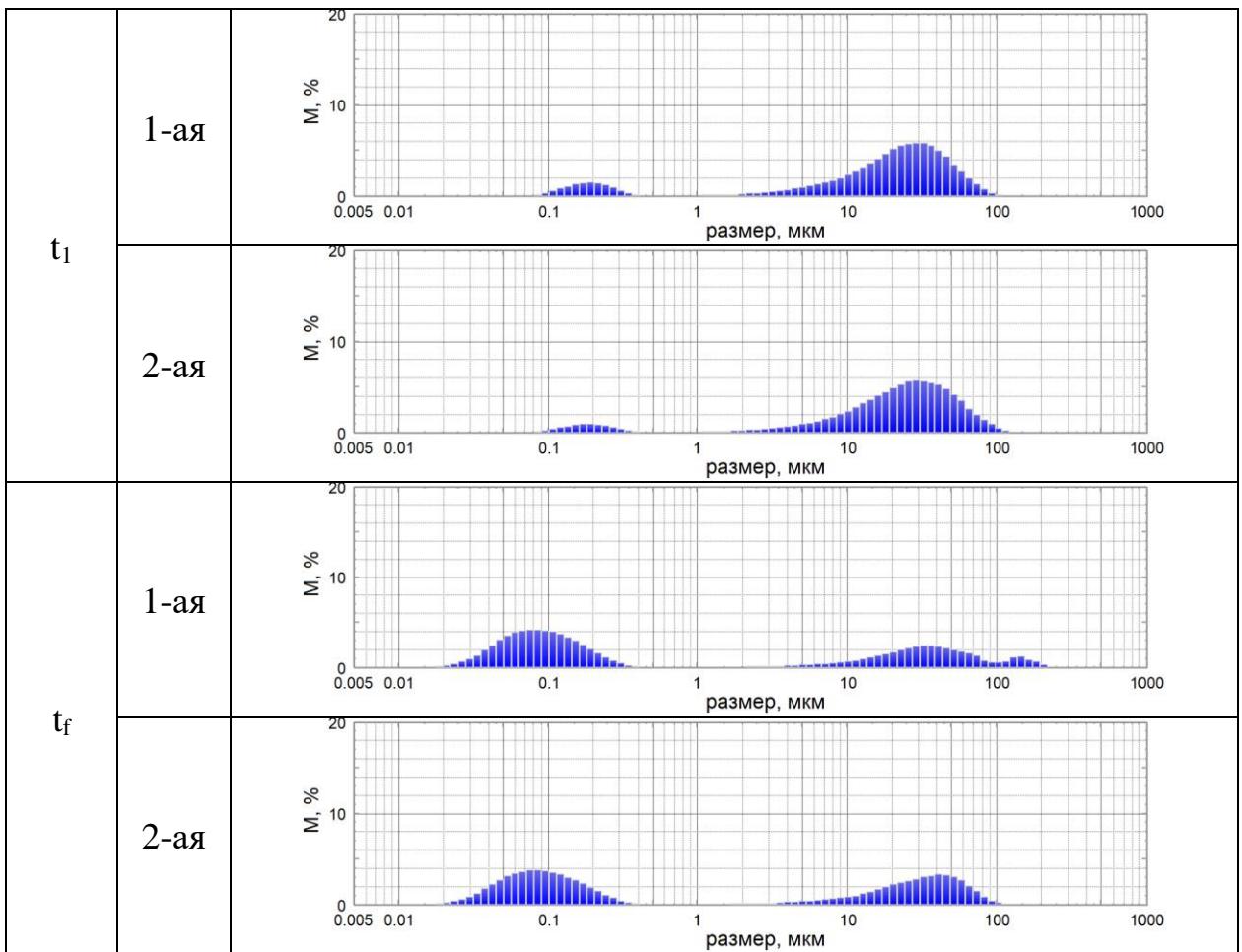


Рис. 4.2.3. Распределения абляционных частиц по массам для 1-ой и 2-ой проб для разных моментов времени:  $t_0$  – начало анализа,  $t_1$  – промежуточное значение  $t_1=t_0+30$  с;  $t_f$  – время установления стационарного распределения.

высокой воспроизводимости результатов. Из стационарных распределений (третья строка Рис. 4.2.2) видно, что в результате ультразвуковой абляции среди прочих действительно образуется значительное число частиц нанометровых размеров. При этом наибольшее число таких частиц имеет размеры, значения которых (по уровню 0.5) распределены в довольно узком интервале от 20 нм до 60 нм с максимумом распределения при 35 нм. В тоже время, как следует из Рис. 4.2.3, общая масса таких наночастиц составляет чуть больше половины общей массы абляционных частиц в отобранных пробах. Вторая половина массы, как видно, приходится на частицы существенно больших размеров, однако их относительное число крайне мало (см. Рис. 4.2.2).

## **Краткие выводы по результатам главы 4**

Впервые экспериментально зарегистрировано образование частиц нанометровых размеров при абляции объемного твердотельного образца в воде, реализуемой за счет локального воздействия высокоинтенсивных сфокусированных ультразвуковых импульсов с несущей частотой 1.8 МГц и перепадом акустического давления в фокусе 50 МПа на поверхность гипсового образца. Выполненные с помощью лазерного анализатора частиц измерения распределения числа абляционных частиц по размерам и массам показали, что при используемых параметрах ультразвукового воздействия размеры подавляющего большинства частиц нанометрового диапазона сосредоточены в достаточно узкой области от 20 нм до 60 нм с максимумом распределения при 35 нм. При этом масса всех частиц из этой области размеров составила половину общей массы частиц в пробах, взятых для анализа. Вторая половина массы абляционных частиц в пробах приходится на частицы, имеющие большие размеры, однако их общее число крайне мало.

Таким образом, полученные результаты представляются перспективными для дальнейшего развития предложенной схемы ультразвуковой абляции применительно к чистым металлам и другим материалам, наночастицы которых представляют интерес для научных и индустриальных приложений, а также создание которых по тем или иным причинам затруднительно существующими методами.

## **ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

1. По мере роста интенсивности импульсного сфокусированного ультразвукового пучка, воздействующего на границу раздела двух несмешивающихся маловязких жидкостей, находящихся в малом объеме, выделено три характерных режима реакции границы: режим вынужденных колебаний границы раздела, режим управляемой ультразвуком эмиссии одиночных капель одинаковых размеров и режим стохастической ультразвуковой эмиссии множественных капель.

2. В первом режиме установлено, что возбуждение низшей симметричной моды колебаний границы несмешивающихся маловязких жидкостей с помощью сфокусированного ультразвукового пучка наиболее эффективно при удалении границы раздела от плоскости возбуждения ультразвука на величину в 1.3-1.5 фокусного расстояния. Во втором режиме получена линейная зависимость размера эмитируемых капель от длительности ультразвукового импульса.

3. С помощью предложенного и экспериментально апробированного в условиях микрогравитации одноимпульсного ультразвукового метода измерены с достаточно высокой точностью ( $\sim 10^{-4}$  Н/м) малые ( $\sim 10^{-3}$  Н/м) значения коэффициента межфазного натяжения несмешиваемых и бинарных жидкостей. Корректность полученных результатов подтверждена их совпадением с результатами измерений независимым методом, и также с результатами других авторов при использовании альтернативных подходов.

4. Экспериментально продемонстрирована возможность сепарирования эритроцитов и плазмы крови человека в поле стоячих поверхностных акустических волн мегагерцового диапазона.

5. При деструктивном воздействии в воде сфокусированных ультразвуковых импульсов с несущей частотой в единицы мегагерц и перепадом акустического давления до 50 МПа на гипсовый фантом почечных камней зарегистрирован эффект ультразвуковой абляции,

сопровождающийся образованием частиц в том числе с размерами в десятки нанометров.

**ПРИЛОЖЕНИЕ 1. Экспериментальная оценка интенсивности акустического поля в фокальной плоскости ультразвукового преобразователя на границе раздела жидкостей FC70 / СМ 1.5 сСт.**

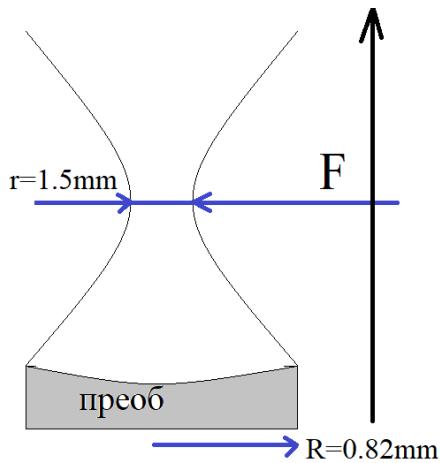


Рис. 1. Иллюстрация к оценке интенсивности акустического поля в фокальной плоскости ультразвукового преобразователя в жидкости. R- радиус преобразователя, r-радиус пучка ультразвука в фокусе.

Было проведено измерение высоты подъема границы жидкостей под действием ультразвука в случае, когда граница раздела жидкостей и фокус совпадают (а точнее, когда граница раздела слегка выше фокуса). Именно тогда падающая на границу раздела жидкостей ультразвуковая волна становится плоской, что делает расчет радиационного давления наиболее простым. Высота подъема границы жидкости  $h$  при действии на нее радиационного давления, обусловленного прохождением плоской ультразвуковой волны, рассчитывается по формуле [71]:

$$h = \frac{P_r r^2}{\sigma} \frac{1 - \alpha r K_1(\alpha r)}{\alpha^2 r^2} \quad (2)$$

где  $P_r$  – радиационное давление на границе раздела жидкостей,  $r$  – радиус пучка,  $\sigma$  – коэффициент межфазного натяжения,  $\alpha^2 = \rho g / \sigma$ ,  $\rho$  – плотность жидкости, из которой идет звуковая волна,  $g$  – ускорение свободного падения,  $K_1(ar)$  – функция Бесселя первого рода.

Радиационное давление звука на плоскую границу раздела жидкостей представляется как [72, 73]:

$$\bar{P} = \bar{E}(1+R)\cos^2\beta \quad (3),$$

где  $\bar{E} = \frac{\bar{I}}{c}$  – среднее по времени значение плотности полной энергии плоской звуковой волны,  $I$  – интенсивность звука,  $c$  – скорость звука,  $R$  – коэффициент отражения звука на границе двух сред,  $\beta$  – угол падения звуковой волны на границу.

При падении звуковой волны на границу раздела под прямым углом  $\bar{P} = \bar{I}(1+R)/c$ . Отсюда, интенсивность звука:

$$I = \frac{Pc}{1+R} \quad (4)$$

Подставляя  $P_r$  из (2) в (4) и представляем коэффициент отражения звука как  $R = (Z_1 - Z_2)/(Z_1 + Z_2)$ , где  $Z_1 = \rho_1 c_1$  и  $Z_2 = \rho_2 c_2$  – акустические импедансы первой и второй жидкости, а  $\alpha^2 = \rho_1 g / \sigma$ , получим выражение для расчета интенсивности звуковой волны в области фокуса по известной высоте подъема границы:

$$I = h \frac{c_1 \rho_1 g r^2}{r^2 \left( 1 - r \sqrt{\frac{\rho_1 g}{\sigma}} K_1 \left( \sqrt{\frac{\rho_1 g}{\sigma}} r \right) \right) \left( 1 + \frac{\rho_1 c_1 - \rho_2 c_2}{\rho_1 c_1 + \rho_2 c_2} \right)} \quad (5)$$

Проведены несколько экспериментов по подъему границы жидкости при разном значении напряжения на преобразователе. На ультразвуковой преобразователь поступал гармонический сигнал с частотой  $f=2130$  КГц, что приводило к деформации границы раздела жидкостей. Этот процесс регистрировался на скоростную видеокамеру. После экспериментов с разными напряжениями на преобразователе (изображение типовой деформации поверхности раздела жидкостей представлено на Рис. 2.) был получен набор фотографий деформации границы раздела жидкостей, по которым определяются высоты подъема границы раздела жидкостей как разница между ее уровнем в покое и средним значением уровня при подъеме.

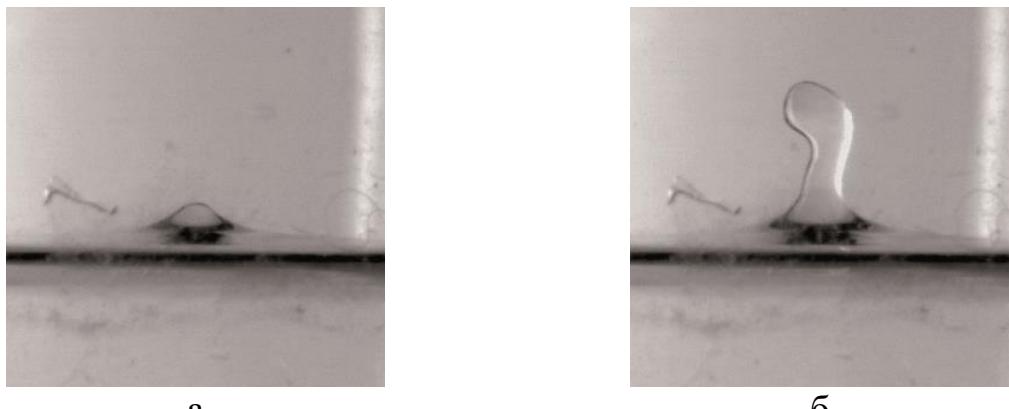


Рис. 2. Фотографии профиля поверхности жидкостей FC70 / СМ 1.5 сСт при напряжении на преобразователе 6.4 В и 9.4 В.

На Рис. 3. представлена зависимость высоты подъема границы раздела жидкостей от квадрата напряжения на преобразователе. Более высокие значения напряжения приводят к фонтанированию FC70 в силиконовое масло и не пригодны для оценки интенсивности ультразвука. Максимальное значение напряжения (квадрат его равен  $89.8 \text{ В}^2$ ) дает подъем границы раздела жидкостей в 2.4 мм. Рассчитаем по формуле (5) интенсивность акустического поля в фокальной плоскости ультразвукового преобразователя на границе жидкостей FC70 / СМ 1.5 сСт. Для этого примем радиус фокальной перетяжки равным длине волны в нижней жидкости  $\lambda=c_1/f=0.3$  мм, а коэффициент межфазного натяжения  $\sigma=0.006 \text{ Н/м}$  [74]. Так, при максимальном напряжении на преобразователе  $I=5.0\pm0.3 \text{ Вт/см}^2$ .

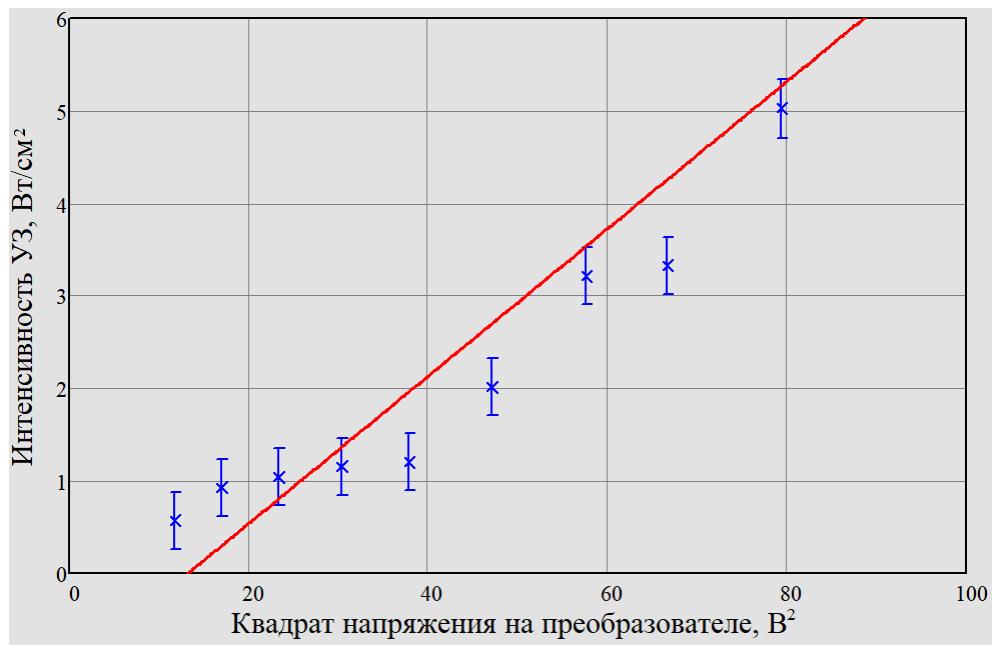


Рис. 3. Зависимость интенсивности акустического поля в фокальной плоскости ультразвукового преобразователя на границе раздела жидкостей FC70 / СМ 1.5 сСт от квадрата напряжения на преобразователе.

## **СПИСОК РАБОТ СОИСКАТЕЛЯ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ**

По результатам диссертации в журналах и сборниках конференций опубликовано 10 научных работ, из них 5 статей в рецензируемых научных журналах, входящих в список ВАК РФ для публикации основных результатов докторских и кандидатских диссертаций и индексируемых в международных базах Web of Science, Scopus.

1. Brysev A., Zoueshtiagh F., Pernod P., Preobrazhensky V., Diwakar S.V. and **Makalkin D.** Excitation of Standing Gravity-Capillary Waves at an Interface between Two Immiscible Liquids by a Periodic Sequence of Ultrasound Pulses // Physics of Wave Phenomena. — 2016. — Vol. 24. — N 2. — P. 155-160.
2. Brysev A., Zoueshtiagh F., Pernod P., Preobrazhensky V., **Makalkin D.** Droplet Ejection from an Interface between Two Immiscible Liquids under Pulsed Ultrasound // Physics of Wave Phenomena. — 2016. — Vol. 24. — N 3. — P. 238-244.
3. **Макалкин Д.И.**, Коршак Б.А., Брысов А.П. Экспериментальное наблюдение структурирования эритроцитов крови в поле стоячих поверхностных акустических волн // Акустический журнал. — 2017. — Т. 63, — N 5, — С. 553-559.
4. A.P. Brysev, R.V. Klopotov, **D.I. Makalkin**. Ultrasound ablation of a solid sample in water accompanying by formation of nanoparticles // Physics of Wave Phenomena. - 2019. - V. 27, - No 1, - P. 51-55.
5. Krutyansky L., Brysev A., Zoueshtiagh F., Pernod P., **Makalkin D.** Measurements of interfacial tension coefficient using excitation of progressive capillary waves by radiation pressure of ultrasound in microgravity // Microgravity Science and Technology. — 2019. <https://doi.org/10.1007/s12217-019-9700-7>
6. Брысов А.П., Преображенский В.Л., Перно Ф., Зоештиаг Ф., **Макалкин Д.И.** Эмиссия капель и колебания границы несмешивающихся жидкостей, находящихся в малом объеме, инициированные импульсно-периодическим сфокусированным ультразвуковым пучком // Сборник трудов

2-ой Всероссийской акустической конференции. — Нижний Новгород: 6-9 июня 2017, (на CD).

7. **Макалкин Д.И.**, Коршак Б.А., Брысов А.П. Упорядочивание эритроцитов крови человека в поле стоячих акустических волн // Сборник трудов 2-ой Всероссийской акустической конференции. — Нижний Новгород: 6-9 июня 2017, (на CD).

8. Krutyansky L., Brysev A., Zoueshtiagh F., **Makalkin D.** and Pernod P. Measurements of interfacial tension coefficient by excitation of capillary-gravity waves using focused ultrasound // Actes du colloque annuel du GDR MFA 2799. — Fréjus: 8-10 Novembre 2017. — P.25-26.

9. Крутянский Л.М., Брысов А.П., Zoueshtiagh F., Pernod P., **Макалкин Д.И.** Измерение малых значений коэффициента межфазного натяжения с помощью возбуждения капиллярных волн импульсом радиационного давления ультразвука в условиях микрогравитации // Школа-конференция молодых ученых ИОФ РАН "Прохоровские недели". — Москва: 11-23 октября 2018. — С.136-138.

10. А.П. Брысов, Р.В. Клопотов, **Д.И. Макалкин**. Регистрация образования наночастиц при ультразвуковой абляции гипсового фантома почечного камня в воде. Сборник трудов 17-ой Всероссийской школы-семинара "Волны 2019", Москва-Красновидово, 26-31 мая 2019.

11. А.П. Брысов, Р.В. Клопотов, **Д.И. Макалкин**. Наблюдение особенностей деструктивного воздействия мощного сфокусированного ультразвукового пучка мегагерцового диапазона на гипсовый фантом почечного камня. Сборник трудов 32-ой сессии РАО, Москва, 14 – 18 октября 2019.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wood R.W., Loomis A.L. The physical effects of high-frequency sound waves of great intensity // Phil. Mag. – 1927. – V. 7 – P. 417–433.
2. Friend J., Yeo L. Y. Microscale Acoustofluidics: Microfluidics Driven Via Acoustics and Ultrasonics // Reviews of Modern Physics. – 2011. – V. 83. – N 2. – P. 647-704.
3. Faraday M. On a Peculiar Class of Acoustical Figures; and on Certain Forms Assumed by Groups of Particles upon Vibrating Elastic Surfaces // Philosophical Transactions of the Royal Society of London. – 1831. – V. 121. – P. 299-340.
4. Benjamin T. B., Ursell F. The Stability of the Plane Free Surface of a Liquid in Vertical Periodic Motion // Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences. 1954. V. 225. N 1163. P. 505–515.
5. Kumar K., Tuckerman L. S. Parametric instability of the interface between two fluids // J. Fluid Mech. 1994., V. 279. P. 49-68.
6. Kudrolli A., Gollub J. Localized Spatiotemporal Chaos in Surface Waves // Physical Review. 1996. E 54. R1052.
7. Lee C., Wang T. Acoustic Radiation Pressure. // The Journal of the Acoustical Society of America. 1993. V. 94. P. 1099-1109.
8. Hamilton M. F., Blackstock D. T. Nonlinear acoustics. Academic press San Diego, 1998.
9. Chu B.-T., Apfel R. E. Acoustic Radiation Pressure Produced by a Beam of Sound // The Journal of the Acoustical Society of America. 1982. V. 72. N 6. P. 1673-1687.
10. Reibold R. Liquid-Surface Relief: Its Transient Behavior for Pulse-Excited Transducers // Ultrasonics. 1980. V. 18. P. 85-89.
11. Issenmann B., Nicolas A., Wunenburger R., Manneville S., Delville J.-P. Deformation of Acoustically Transparent Fluid Interfaces by the Acoustic Radiation Pressure // Euro-physics Letters. 2008. V. 83. N 3. 34002.
12. Lang R.J. Ultrasonic atomization of liquids // J. of Acoustical Soc. 1962. V. 34. N 1. P. 6–9.

13. Boucher R.G.M., Kreuter J. Fundamentals of the ultrasonic atomization of medicated solutions // Ann. Allergy. 1968, V. 26, P. 59–63.
14. Krause K. A. Focusing Ink Jet Head // IBM Technical Disclosure Bulletin. 1973. V. 16. N 4. P.1168.
15. Ellson R.N. Picoliter: Enabling precise transfer of nanoliter and picoliter volumes // Drug Discovery Today. 2002. V. 7. N 5(Suppl.). P. S32–S34.
16. Cheung Y. N., Nguyen N. T., Wong T. N. Droplet manipulation in a microfluidic chamber with acoustic radiation pressure and acoustic streaming // Soft Matter. 2014. N 10. P. 8122-8132.
17. Miglani A., Basu S. Sphere to ring morphological transformation in drying nanofluid droplets in a contact-free environment // Soft Matter. 2015. V. 11. P. 2268-2278.
18. B. Issenmann, A. Nicolas, R. Wunenburger, S. Manneville, J.-P. Delville. Experimental confirmation of the theory of acoustic radiation pressure applying on transparent interfaces // JASA. 2008. V. 65. N 06. P. 123.
19. Wunenburger R., Casner A., Delville J.-P. // J.-P. Phys. Rev. 2006. E73. P. 036314.
20. Casner A., Delville J.-P., Brevik I. // J. Opt. Soc. Am. B. 2003. V. 20. P. 2355.
21. Bergmann L. Der ultraschall und seine anwendung in wissenschaft und technik // Hirzel. 1954)
22. Issenmann B., Wunderburger R., Chraibi H., Gandil M., Deville J.-P. Unsteady Deformations of a Free Liquid Surface Caused by Radiation Pressure // Journal of Fluid Mechanics. 2011. V. 682. P. 460-490.
23. Kumar A., Krishnamurthy H.R., Gopal E.S.R.: Equilibrium critical phenomena in binary liquid mixtures // Phys. Rep. 1983. V. 98. N 2. P. 57–143.
24. Ancherbak S., Yasnou V., Mialdun A., Shevtsova V. Coexistence curve, density, and viscosity for the binary system of perfluorohexane+silicone oil // J. Chem. Eng. Data. 2018. V. 63. N 8. P. 3008–3017.

25. Diwakar S.V., Jajoo V., Amiroudine S., Matsumoto S., Narayanan R., Zoueshtiagh F. Influence of capillarity and gravity on confined faraday waves // Phys. Rev. Fluids. 2018. V. 3. P. 073902.
26. Stauffer C.E. The measurement of surface tension by the pendant drop technique // J. Phys. Chem. 1965. V. 69. N 6. P. 1933–1938.
27. Cabane B., Sylvie H. Liquides. Solutions, Dispersions, èmulsions, Gels Belin (2015)
28. Pojman J.A., Whitmore C., Liveri M.L.T., Lombardo R., Marszalek J., Parker R., Zoltowski B. Evidence for the existence of an effective interfacial tension between miscible fluids Isobutyric acid- water and 1-butanol- water in a spinning-drop tensiometer // Langmuir. 2006. V. 22. N 6. P. 2569–2577.
29. Passerone A. Twenty years of surface tension measurements in space // Microgravity Sci. Technol. 2011. V. 23. N 2. P. 101–111.
30. Rayleigh J.W.S.B. The theory of sound, volume 2 - Macmillan – 1896.
31. Thomson W.: Xlvi. hydrokinetic solutions and observations. The London hydrokinetic Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science. 1871. V. 42. N 281. P. 362–377.
32. Fauve S., Kumar K., Laroche C., Beysens D., Garrabos Y. Parametric instability of a liquid-vapor interface close to the critical point // Phys. Rev Lett. 1992. V. 68. N 21. P. 3160.
33. Vibhor J. Faraday instability in binary fluids. PhD thesis. University of Bordeaux, France, 2016.
34. Cinbis C., Khuri-Yakub B.T. A noncontacting technique for measuring surface tension of liquids // Review of scientific instruments. 1992. V. 63. N 3. P. 2048–2050.
35. Tyson W.R., Miller W.A. Surface free energies of solid metals estimation from liquid surface tension measurements // Surf. Sci. 1977. V. 62. N 1. P. 267–276.
36. Rhim W.-K., Ohsaka K., Paradis P.-F., Spjut R. E. Noncontact technique for measuring surface tension and viscosity of molten materials using high

temperature electrostatic levitation // Review of scientific instruments. 1999. V. 70. N 6. P. 2796-2801.

37. Hyers R. W., Rogers J. R. A review of electrostatic levitation for materials research // High Temperature Materials and Processes. 2008. V. 27. N 6. P. 461-474.
38. He P. Direct measurement of ultrasonic dispersion using a broadband transmission technique // Ultrasonics. 1999. V. 37. N 1. P. 67–70.
39. Marple L. Computing the discrete-time analytic signal via fft. IEEE Trans. Signal Process. 1999. V. 47. N 9. P. 2600–2603.
40. Someya S., Munakata T. Measurement of the interface tension of immiscible liquids interface // Journal of Crystal Growth. 2005. V. 275. N 1. P. e343-e348.
41. Ward K. Faraday instability in mechanically and electrically forced system fluids. PhD thesis. University of Florida, USA, 2018.
42. Volpatti L.R., Yetisen A.K. Commercialization of microfluidic devices // Trends Biotechnol. 2014. V. 32. N 7. P. 347-350.
43. King K.R., Wang S., Irimia D., Jayaraman A., Toner M., Yarmush M.L. A high-throughput microfluidic real-time gene expression living cell array // Lab Chip. 2007. V. 7. N 1, P. 77-85.
44. Wang H., Lee G.B. Automatic bio-sampling chips integrated with micro-pumps and micro-valves for disease detection // Biosens. Bioelectron. 2005. V. 21. N 3. P. 419-425.
45. Dittrich P.S., Manz A. Lab-on-a-chip: microfluidics in drug discovery // Nat. Rev. Drug Discovery. 2006. V. 5. N 3. P. 210-218.
46. Sozer N., Kokini J.L. Nanotechnology and its applications in the food sector // Trends Biotechnol. 2009. V. 27. N 2. P. 82-89.
47. Louizos L.-A., Athanasopoulos P.G., Varty K. Microelectromechanical Systems and Nanotechnology. A Platform for the Next Stent Technological Era // Vasc Endovascular Surg. 2012. V. 46. N 8. P. 605-609.

48. Saggiomo V., Velders H.A. Simple 3D Printed Scaffold-Removal Method for the Fabrication of Intricate Microfluidic Devices // Advanced Science. 2015. V. 2. N 8. P. 10.
49. Bhargava K. C., Thompson B. and Malmstadt N. Discrete elements for 3D microfluidics // PNAS. 2014. V. 111. N 42. P. 15013-15018.
50. Strobl C.J., Rathgeber A., Wixforth A., Gauer C., Scriba J. Planar microfluidic processors // 2002. IEEE International Ultrasonics Symposium. Proceedings. 2002. V. 1. P. 255-258.
51. Руденко О.В., Коробов А.И., Коршак Б.А., Лебедев-Степанов П.В., Молчанов С.П., Алфимов М.В. Самосборка ансамблей коллоидных частиц в акустическом поле // Российские нанотехнологии. 2010. Т. 5. N 7-8. С. 63-65.
52. Dyson M., Woodward B., Pond J.B. Flow of red blood cells stopped by ultrasound // Nature. 1971. V. 232. P. 572-573.
53. Haar J.G., Wyard S.I. Blood cell banding in ultrasonic standing fields. A physical analysis // Ultrasound in Med. And Biol. 1978. V. 4. № 2. P. 111-123.
54. Гурбатов С.Н., Клемина А.В., Демин И.Ю., Клемин В.А., Долгов В.В. Безреагентный акустический анализ цельной крови и сыворотки крови человека // Лаборатория. 2010. N 2. С. 29.
55. Gusev V.A., Rudenko O.V. The field of radiative forces and the acoustic streaming in a liquid layer on a solid half-space // Acoust. Phys. 2010. V. 56. N 6. P. 861-870.
56. McLaren C.E., Brittenham G.M., Hasselblad V. Statistical and graphical evaluation of erythrocyte volume distributions // Am. J. Physiol. 1987. V. 252. N 4 Pt 2. H857-H866.
57. Daniel M.-C., Astruc D. Gold Nanoparticles: Assembly, Supramolecular Chemistry, Quantum-Size-Related Properties, and Applications toward Biology, Catalysis, and Nanotechnology // Chem. Rev. 2004. V. 104. P. 293.
58. Lee J., Mahendra S., Alvarez P. Nanomaterials in the Construction Industry: A Review of Their Applications and Environmental Health and Safety Considerations // ACS Nano. 2010. V. 4. P. 3580.

59. Симакин А.В., Воронов В.В., Шафеев Г.А. Образование наночастиц при лазерной абляции твердых тел в жидкостях // Труды ИОФАН. 2004. V. 60. P. 83.
60. Zhang D., Gökce B., Barcikowski S. Laser Synthesis and Processing of Colloids: Fundamentals and Applications // Chem. Rev. 2017. V. 117. P. 3990.
61. Андреев С.Н., Вовченко В.И., Самохин А.А. Исследование взрывного вскипания прозрачной жидкости на металлической подложке, облучаемой наносекундными лазерными импульсами // Труды ИОФАН. 2004. V. 60. P. 149.
62. Гаврилов Л.Р. Фокусированный ультразвук высокой интенсивности в медицине. - М.: Физис. - 2013. - 656 с.
63. Hinman J., Suslick K. Nanostructured Materials Synthesis Using Ultrasound // Top. Curr. Chem. (Z). 2017. V. 375. N 12. P. 59.
64. Ismail Y. A. M., Kishi N., Soga T. Ultrasonic ablation as a novel technique for producing pure aluminium nanoparticles dispersed in different liquids for different applications // Japanese Journal of Applied Physics. 2015. V. 54. N 7. P. 075002.
65. Maxwell A.D., Cunitz B.W., Kreider W., Sapozhnikov O.A., Hsi R.S., Harper J.D., Bailey M.R., Sorensen M.D. Fragmentation of Urinary Calculi In Vitro by Burst Wave Lithotripsy // Journal of Urology. 2015. V. 193. N 1. P. 338-344.
66. Liu Y., Zhong P. BegoStone—a New Stone Phantom for Shock Wave Lithotripsy Research (L) // J. Acoust. Soc. Am. 2002. V. 112. N 4. P. 1265.
67. McAteer J.A., Williams J.C., Cleveland R.O., Cauwelaert J.V., Bailey M.R., Lifshitz D.A., Evan A.P. Ultracal-30 Gypsum Artificial Stones for Research on Mechanisms of Stone Breakage in Shock Wave Lithotripsy // Urolog. Res. 2005. V. 33. P. 429.
68. Simmons W.N., Cocks F.H., Zhong P., Preminger G. A Composite Kidney Stone Phantom with Mechanical Properties Controllable Across the Range of Properties of Human Kidney Stones // J. Mech. Behav. Biomed. Mater. 2010. V. 3. N 1. P. 130.

69. Hill C.R. Ultrasonic Exposure Thresholds for Changes in Cells and Tissues // J. Acoust. Soc. Am. 1972. V. 52(2B). P. 667.
70. Hill C.R., Joshi G.P. The Significance of Cavitation in Interpreting the Biological Effects of Ultrasound. in Proceedings of the Conference on Ultrasonics in Biology and Medicine (UBIOMED-70) (Polish Academy of Sciences, Warsaw, 1970).
71. Агранат Б.А., Хавский Н.Н., Дубровин М.Н., Эскин Г.И. Основы физики и техники ультразвука. – М.: Высшая школа. – 1987.
72. Ландау Л.Д., Лифшиц Е. М. Механика сплошных сред. М.: ГИТТЛ - 1954.
73. Borgnis F.E. Theory of Acoustic Radiation Pressure // Rev. Mod. Phys. 1953. V. 25. N 3.
74. Krutyansky L., Brysev A., Zoueshtiagh F., Pernod P., Makalkin D. Measurements of interfacial tension coefficient using excitation of progressive capillary waves by radiation pressure of ultrasound in microgravity // Microgravity Science and Technology, <https://doi.org/10.1007/s12217-019-9700-7>
75. Физика. Большой энциклопедический словарь / Главный редактор Прохоров А.М. – М.: Большая Российская энциклопедия. – 1998. – 944 с.