

Особенности электромагнитных свойств льда вблизи температуры фазового перехода вода–лед

© Г.С. Бордонский

Институт природных ресурсов, экологии и криологии Сибирского отделения Российской академии наук, 672090 Чита, Россия

E-mail: bord@mail.chita.ru
lgc255@mail.ru

(Поступила в Редакцию 17 мая 2004 г.)

Исследован пресный лед в резонаторе при его нагревании до 0°C и последующем охлаждении на частоте 6.3 GHz. При этом процессе обнаружено раздвоение резонансной линии пропускания на 60–70 MHz. Наблюдаемый эффект можно связать с существованием во льду двух мод колебаний, связь между которыми возрастает вблизи 0°C . В такой среде возможно существование двух волн с одинаковыми поляризациями и близкими волновыми числами. Данное предположение подтверждено экспериментально при измерениях прохождения излучения на частоте 13 GHz в природном пресном ледяном покрове. В этих измерениях наблюдались осцилляции сигнала, определяемые интерференцией двух волн, с чередованием максимумов и минимумов с периодом 4.6 м, что соответствует частоте биений ~ 37 MHz.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 03-02-16042).

В работе [1] установлено, что при заполнении СВЧ-резонатора льдом из H_2O и D_2O наблюдались различия в форме резонансных кривых пропускания резонатора. Для льда H_2O наблюдалась „вытянутость“ кривой в область высоких частот, а для льда D_2O — в область более низких частот. Эффект был наиболее выражен для температур вблизи точки фазового перехода вода–лед. Предполагалось, что эффект связан с различием квантовых статистик для протонов и дейтронов.

В настоящей работе выполнено исследование электромагнитных свойств пресного льда H_2O вблизи температуры фазового перехода. С этой целью продолжены измерения льда в резонаторе вблизи частоты 6 GHz, а так же выполнены измерения распространения электромагнитного излучения на частоте 13 GHz через толщину льда на дистанциях 40–100 м.

1. Методика эксперимента

Установка для выполнения измерений параметров льда в прямоугольном резонаторе аналогична установке, представленной в работе [1]. Основой ее является стандартный измеритель частотных характеристик (например, серии P2). В разрыв волноводной линии передач помещается резонатор, полностью заполненный льдом. Использовался полуволновый прямоугольный резонатор типа H_{101} , выполненный из дюралюминия. Связь резонатора с волноводным трактом осуществлялась через диафрагмы со щелями в плоскости магнитного поля. Размеры резонатора составляли: сечение 8×17 mm, длина — 20 mm. Резонатор полностью заполнялся льдом, образованным из дистиллированной воды. Вода замораживалась в резонаторе при температуре -15°C , после чего образец выдерживался в течение суток при

той же температуре. Низшая резонансная частота в зависимости от температуры, особенностей приготовления образца и используемых диафрагм, находилась в интервале частот 6.3–6.4 GHz. Частота сигнала в установке измерялась внешним частотомером, точность измерений составляла ± 1 MHz. Высокочастотный тракт установки находился в холодном помещении при температуре -25°C . Регулировка температуры резонатора с образцом производилась путем его нагрева специальными электрическими нагревателями. Температура резонатора определялась с помощью терморезистора, помещенного в тело резонатора, точность ее измерения была $\pm 0.1^{\circ}\text{C}$.

Электромагнитные свойства льда определяют особенности распространения в нем электромагнитных волн. Поэтому для определения электромагнитных характеристик можно использовать методы измерения в свободном пространстве для образцов больших размеров. В отличие от лабораторных измерений, где исследуются небольшие образцы, в этом случае возможно выявление более тонких эффектов, например, гиротропии льда. Для сопоставления результатов выполнено также измерение

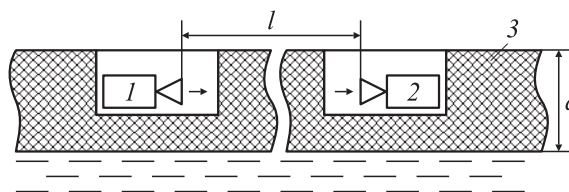


Рис. 1. Схема экспериментов по радиопросвечиванию ледяного покрова для определения электромагнитных характеристик льда. 1 — передатчик, 2 — приемник, 3 — ледяной покров, l — расстояние между антеннами передатчика и приемника, d — толщина льда.

характеристик проходящего микроволнового излучения через толщу льда на расстояниях до 100 м. С этой целью проводились эксперименты на пресном ледяном покрове. Схема данных экспериментов приведена на рис. 1.

Передатчик, выполненный на диоде Ганна (1), и супергетеродинный радиометрический приемник (2) устанавливались на глубину около 0.5 м в ледяной покров (3). Расстояние между ними изменялось путем приближения передатчика от 100 до 40 м. Для этого производилось выпиливание блоков льда и их удаление. Излучение осуществлялось на вертикальной поляризации, а прием велся на вертикальной и горизонтальной поляризациях. Эксперименты проводились на озере с минерализацией льда 5 mg/kg, что соответствует концентрации солей в однократно дистиллированной воде. Измерения выполнены при различных температурах льда при суточных изменениях температуры в период времени, когда она приближалась к 0°C. Использована частота излучения 13 GHz. Применяемые рупорные антенны имели полуширины диаграмм направленности 0.1 rad. Толщина ледяного покрова во время измерений составляла 1.3–1.4 м.

2. Результаты измерений

При лабораторных измерениях определялась резонансная частота резонатора, а также регистрировалось изменение амплитуды, ширины резонансной кривой и ее формы. Исследуемый образец начинали медленно нагревать от температуры -25°C со скоростью около 6 градусов в час. В начальном состоянии наблюдалась одnogорбая резонансная кривая пропускания сигнала с небольшой асимметрией, заключающейся в вытянутости кривой в высокочастотную область. Ширина резонансной кривой по уровню 0.5 составила 18 MHz. Она возрастала по мере нагрева среды с одновременным падением амплитуды резонанса. Поскольку возможно

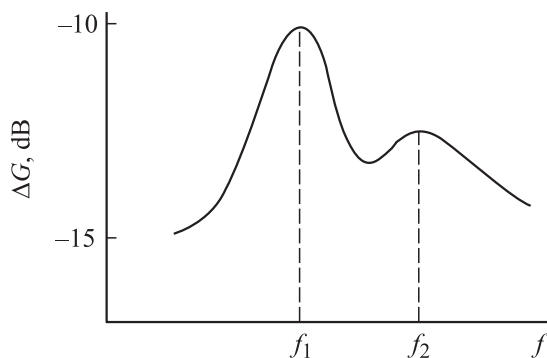


Рис. 2. Линия пропускания резонатора со льдом после его нагревания от -25 до 0°C за время около четырех часов и последующего охлаждения в течение 20 минут до -11.5°C . f_1 и f_2 — максимумы пропускания на частотах 6323 и 6387 MHz соответственно. ΔG — уровень сигнала, отсчитываемый от начального значения амплитуды резонанса.

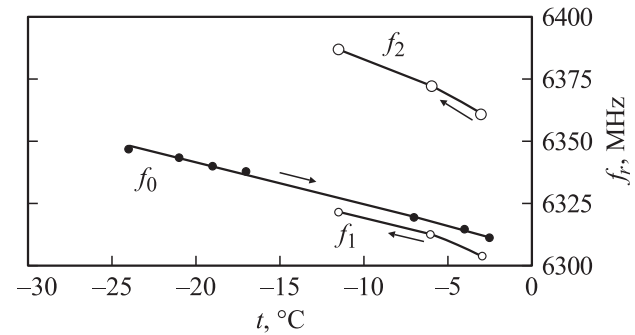


Рис. 3. Ход резонансных частот резонатора f_r при его нагревании (f_0 соответствует одnogорбой кривой пропускания) до температуры, близкой к 0°C , при которой наблюдалось исчезновение сигнала, и последующем охлаждении в течение 20 минут до температуры -11.5°C (f_1, f_2 соответствуют максимумам пропускания двугорбой кривой). Направление изменения температуры во времени указано стрелками на графиках.

некоторое различие температур, определяемых датчиком, находящемся в теле резонатора, и льда вблизи точки фазового перехода, использовалась следующая методика измерений. Предварительными измерениями при медленном нагревании было установлено, что при достижении температуры датчика -0.5°C амплитуда резонатора падала на 10 dB. Чтобы достигнуть температуры в интервале $-0.1-0^{\circ}\text{C}$, резонатор нагревался до момента полного исчезновения СВЧ-сигнала, который можно было регистрировать на установке, т.е. до уровня -30 dB. Сразу после исчезновения сигнала нагревание прекращалось, чтобы исключить таяние образца. Измерение продолжалось, когда сигнал становился значительно больше шумов установки.

При этом была обнаружена интересная особенность: после достижения 0°C и последующего охлаждения с появлением регистрируемой резонансной характеристики на резонансной кривой появились два горба (рис. 2). Их особенность заключалась в том, что высота двух пиков оказалась различной, с разницей в 3 dB. Менее выраженный пик наблюдался в высокочастотной области. Сдвиг их максимумов по частоте от первоначального также оказался асимметричным. Низкочастотный пик оказался сдвинутым приблизительно на 7 MHz, а высокочастотный — на 50 MHz. Однако, при охлаждении льда двугорбость не исчезла, а сохранялась до температуры -11°C , сохранялось также большее поглощение в среде. Амплитуда максимальной резонансной кривой была на 10 dB ниже исходной одnogорбой резонансной кривой. Обнаруженный гистерезис формы кривой пропускания представлен на рис. 3, где приведены зависимости резонансных частот при нагревании до 0°C (одна резонансная частота) и охлаждении от 0°C (две резонансные частоты). Наблюдаемая разность частот двух пиков в эксперименте составляла 60–70 MHz.

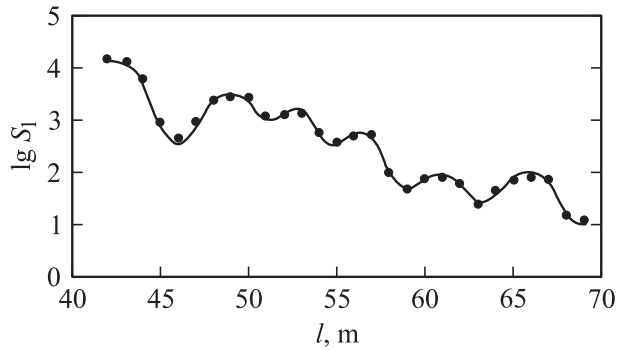


Рис. 4. Зависимость логарифма первого параметра Стокса излучения на частоте 13 GHz от расстояния во льду между приемником и передатчиком. Параметр Стокса измерен в относительных единицах.

Далее измерения прекращали и резонатор со льдом помещали в холодное помещение, где он хранился при температуре -15°C в течение трех недель. По истечению этого времени оказалось, что лед восстановил исходные свойства, и регистрировалась одногорбая резонансная характеристика.

Эксперименты с протяженными объектами — при радиопросвечивании ледяного покрова выполнены в марте 2004 г на озере Арахлей, расположенном на Яблоновом хребте (Забайкалье). В это время температура льда приблизилась к 0°C . Состояние ледяного покрова регистрировалось 10 температурными и электрическими датчиками, позволяющими определить увлажненность и температуру по высоте покрова. В эксперименте определялся первый параметр Стокса (S_1) микроволнового поляризованного излучения, характеризующий полную мощность прошедшего излучения от расстояния между приемной и передающей антеннами: $S_1 = P_H + P_V$, где P_H — мощность сигнала на горизонтальной поляризации, P_V — мощность сигнала на вертикальной поляризации.

На рис. 4 приведены результаты измерений параметра S_1 от расстояния между передатчиком и приемником. Температура льда в средней части по высоте составляла -1°C . Расстояние изменялось путем выпиливания и удаления льда с интервалом в 1 м. При этом эксперимент продолжался 8 часов.

Как следует из рис. 4, наблюдалось как затухание излучения во льду (со значением около 1 dB/m), так и чередование максимумов и минимумов с периодом 4.6 м на всем измеряемом пути. Затухание с расстоянием связано как с увеличением пути луча, проходящего в среде, так и с рассеянием энергии на большую площадь в пучке излучения. Однако чередование минимумов и максимумов излучения, что наблюдалось для двух линейных поляризаций, указывает на интерференционный характер поля.

Интерференция может возникнуть из-за отражения части энергии от границ раздела. Отраженные лучи можно

представить в виде совокупности мнимых источников, расположенных в плоскости излучателя. Анализ хода лучей от мнимых источников показывает, что ожидаемое расстояние между интерференционными минимумами на дистанции 40–50 м при данном расположении приборов приблизительно в три раза превышает наблюдаемую. Кроме того, по мере роста дистанции между излучателем и приемником эта длина монотонно возрастает, приводя к исчезновению интерференции. Эти соображения относятся к однократному отражению лучей, т. е. к случаю двух мнимых источников. Если рассматривать большее число источников, то эффект интерференции ослабляется и при $l \gg d$ исчезает из-за того, что они являются противофазными, так как коэффициенты отражения от границ сред лед–воздух и лед–вода имеют разные знаки. Поэтому интерференционные эффекты, связанные с отражением волн от границ, в данном эксперименте несущественны.

Экспериментально изучался также вопрос о возможности распространения излучения на боковых волнах вдоль поверхности раздела лед–воздух. При установлении излучателя за пределы льда на его поверхности сигнал практически полностью пропадал. Отсутствие боковых волн связывается, во-первых, со значительным их затуханием с ростом расстояния и, во-вторых, с использованием направленных антенн, когда большая часть энергии распространяется в пределах угла полного внутреннего отражения.

3. Обсуждение результатов

Аномалии в спектре пропускания резонатора со льдом вблизи точки фазового перехода лед–вода можно объяснить появлением в среде небольшого количества включений жидкой воды. Ее появление должно было бы привести к некоторому росту действительной (ϵ') и мнимой (ϵ'') частей относительной диэлектрической проницаемости, поскольку эти значения для жидкой воды на частоте 6 GHz при 0°C составляют $\epsilon'_1 = 63$, $\epsilon''_1 = 37$ [2] (значения вычислены по формуле Дебая) и существенно превышают аналогичные значения для пресного льда $-\epsilon'_2 = 3.19$ и $\epsilon''_2 = 4.1 \cdot 10^{-3}$ [3].

Значение эффективной диэлектрической проницаемости смеси ϵ_m можно определить по формулам гетерогенных смесей, например, формуле Брауна [4]

$$\epsilon_m = w_1 \epsilon_1 + w_2 \epsilon_2 = \epsilon'_m + i \epsilon''_m, \quad (1)$$

где $\epsilon_1, \epsilon_2, w_1, w_2$ — диэлектрические проницаемости и объемные доли компонент.

Рост ϵ' должен приводить к понижению резонансной частоты резонатора при его фиксированной длине, так как длина волны излучения в прямоугольном волноводе

со средой (λ_1) уменьшается

$$\lambda_1 = \frac{\lambda_0}{\sqrt{\epsilon'_m - \left(\frac{\lambda_0}{2a}\right)^2}}, \quad (2)$$

где λ_0 — длина волны в свободном пространстве, a — ширина широкой стенки волновода. Если считать, что нижний по частоте резонансный пик соответствует новому пониженному значению резонансной частоты из-за появления жидких включений, то соответствующее небольшое приращение $\Delta\epsilon'$, исходя из (2), можно определить из соотношения

$$\frac{\Delta f}{f} \approx \frac{1}{2} \frac{\Delta\epsilon'}{\epsilon'_m - \left(\frac{\lambda_0}{2a}\right)^2}, \quad (3)$$

где $\Delta f = f_0 - f_1$, $\Delta\epsilon' = \epsilon'_m - \epsilon'_2$. Для конкретных данных получаем: $\Delta\epsilon' = 1.7 \cdot 10^{-3}$. Используя (1) для расчета w_1 , получаем $w_1 \approx \Delta\epsilon'/\epsilon'_1 \approx 2 \cdot 10^{-5}$.

Если считать, что приращение $\Delta\epsilon'' \sim \epsilon''_1 \cdot w_1$, то $\Delta\epsilon'' \sim 6 \cdot 10^{-4}$. Ширину резонансной кривой Δf_r можно найти из соотношения

$$\frac{\Delta f_r}{f} = \frac{\epsilon''_m}{\epsilon'_m}.$$

Если считать, что приращение $\Delta\epsilon''$ определяет уширение резонансной кривой, то из полученных данных для $\Delta\epsilon''$ и w_1 имеем $\Delta f_r \sim 1$ МГц. Вблизи 0°C наблюдалось увеличение Δf_r с 18 МГц (при -24°C) до значений ~ 30 МГц. Таким образом, расчеты сдвига частоты и расширения резонансной кривой не соответствуют случаю появления жидкости в среде. Кроме того, концепция эффективной диэлектрической проницаемости не может объяснить раздвоение линии пропускания резонатора. Следовательно, наблюдаемые эффекты не связаны с появлением в резонаторе жидкой воды.

Как известно, двугорбость резонансных кривых наблюдается в системе из двух связанных одинаковых осцилляторов [5]. Поэтому можно предположить, что наблюдаемое раздвоение низшей резонансной моды полуволнового резонатора (рис. 1) объясняется наличием в среде двух мод колебаний молекул воды. Эти состояния относятся, скорее всего, к состоянию протона, так как протон по данным структурных исследований может занимать во льду два положения по линии водородной связи и совершать колебания как по этой линии, так и перпендикулярно ей [6]. Однако в воде и во льду эти состояния, по-видимому, существенно отличаются. Поэтому можно предположить, что молекулы среды вблизи точки фазового перехода могут находиться в двух состояниях: одно соответствует низкотемпературной фазе воды, т.е. чисто кристаллическому льду, а второе соответствует несколько резупорядоченному состоянию со структурой стекла. Такое состояние воды (стеклообразное) образуется при ее быстром охлаждении [6]. Некоторые авторы считают, что переход из твердого состояния в жидкое происходит через фазу

предплавления [7]. В случае льда фаза предплавления могла возникнуть при поглощении средой некоторого количества энергии при 0°C , однако еще недостаточного для образования жидкой воды. При последующем охлаждении такое состояние может некоторое время сохраняться, приводя к небольшому температурному гистерезису электромагнитных свойств среды.

Чисто феноменологический результат, представленный на рис. 1, можно трактовать как появление у льда вблизи 0°C двух значений коэффициента преломления. Возникает вопрос связано ли такое поведение со свойствами среды или оно каким-то образом определяется ее в волноводном резонаторе. Например, неоднородная среда в волноводе может обладать отрицательной дисперсией [8].

Как правило, поликристаллический лед при электромагнитных исследованиях считается однородной средой. Тем не менее он состоит из отдельных монокристаллов с характерными для каждого случая макроскопическими размерами. При таянии льда оно начинается по границам ледяных кристаллов. В результате в пространстве образуется хотя и сильно искаженная, но близкая к периодической объемная сеть проводящих пленок воды. Если такая среда будет иметь два значения коэффициента преломления, то здесь возникает необычное двойное лучепреломление, которое относится к волнам с ортогональными поляризациями. Два значения коэффициента преломления соответствуют волнам с одной поляризацией. Это означает, что при распространении монохроматического излучения во льду при температуре вблизи 0°C и имеющего определенную тепловую историю, возможно наблюдение в среде интерференции двух волн, создающих максимумы и минимумы амплитуды полей.

Появление „новой волны“ предсказано для сред с пространственной дисперсией, когда существенно взаимодействие волн с неоднородностями, размеры которых сравнимы с размерами длины волны вблизи линий поглощения [9]. В частности, вблизи квадрупольных линий при слабом поглощении разность показателей преломления новой и обычной волны будет приводить к сравнительно медленным осцилляциям интенсивности с изменением толщины образца [9].

Прямой эксперимент с измерением первого параметра Стокса излучения, прошедшего через лед, выявил осцилляции мощности излучения от расстояния. Как следует из рис. 4, на фоне плавного роста затухания наблюдалось чередование максимумов и минимумов мощности сигнала с периодом 4.6 м. Некоторое искажение графика на рис. 4 можно связать с особенностями эксперимента — длительностью его выполнения (8 часов), когда происходили изменения параметров из-за изменения температуры среды.

Из полученных данных можно найти разность волновых чисел Δk и соответствующую ей частоту биений. Для двух волн с близкими волновыми числами и одинаковыми поляризациями можно записать (без

учета затухания и в случае равенства амплитуд и фаз отдельных волн) сумму их полей в виде

$$A_1 + A_2 = A_0 \exp\{i(\omega t - kx)\}[1 + \exp i\Delta kx]. \quad (4)$$

Рассматривая действительную часть суммы (4), можно определить Δk по чередованию интерференционных минимумов. Минимумы достигаются при $\Delta kx = n\pi$ ($n = 1, 3, 5, \dots$). Отсюда находим $\Delta k = 2\pi/\Delta x$, где Δx — расстояние между двумя измеренными интерференционными минимумами излучения. Для частоты биений f^* можно записать с учетом изменения длины волны в среде

$$f^* = \frac{c}{\Delta x \sqrt{\epsilon_2}},$$

где c — скорость электромагнитной волны в вакууме. Из измеренных значений для Δx частота биений составляет ~ 37 МГц. Это значение близко к значению разности частот в спектре пропускания резонатора при лабораторных измерениях (рис. 1).

Отметим, что ранее неблюдаемое искажение скатов резонансных линий в спектре пропускания резонаторов [1] можно также связать с существованием двух мод колебаний с близкими частотами и различной амплитудой. Эти состояния из-за малого сдвига частот не разрешались при низкой добротности используемого резонатора. Однако при приближении к 0°C из-за усиления связи между ортогональными модами колебаний и роста разности частот эти моды для льда становятся наблюдаемыми.

Аномалии электромагнитных характеристик льда наблюдались ранее и другими авторами. Например, при радиолокационном определении толщины ледников в Антарктиде при построении профилей толщины наблюдалось исчезновение сигнала на некоторых участках [10]. Этот эффект может объясниться интерференцией двух волн с одной поляризацией.

4. Выводы

Аномалии электромагнитных свойств пресного льда могут объясняться существованием в среде двух мод колебаний, связь между которыми возрастает вблизи 0°C . Эти аномалии проявляются в виде появления двух волн с одной поляризацией и близкими волновыми числами при измерениях в волноводных системах и в протяженных объектах.

Появление дополнительных волн с близкими волновыми числами можно связать с влиянием пространственной дисперсии на микроволновое излучение. Природа пространственной дисперсии во льду может быть связана с поликристаллической структурой льда, в которой кристаллы разделены пленками воды. Этот вопрос требует специального изучения.

Список литературы

- [1] Г.С. Бордонский, Т.Г. Филиппова. ФТТ **43**, 9, 1575 (2001).
- [2] Я.Ю. Ахадов. Диэлектрические свойства чистых жидкостей. Изд-во стандартов, М. (1972). 412 с.
- [3] S.G. Warren. Applied Optics. **23** 1206 (1984).
- [4] В.Ф. Браун. Диэлектрики. ИЛ, М. (1961). 326 с.
- [5] К. Магнус. Колебания: Введение в исследование колебательных систем. Мир, М. (1982). 304 с.
- [6] V. Petrenko, R.W. Whitworth. Physics of Ice. Oxford Univ. Press. (2002). 347 p.
- [7] Г.Д. Селезнев, Л.А. Битюцкая. Конденсированные среды и межфазные границы, **2**, 2, 160 (2002).
- [8] Р.А. Силин. Периодические волноводы. Фазис, М. (2002). 436 с.
- [9] В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. Наука, М. (1979). 432 с.
- [10] В. Богородский, Ч. Бентли, П. Гудмансен. Радиогляциология. Гидрометеиздат, Л. (1983). 312 с.