

## Evaluation of the viscous characteristic length of air-saturated porous materials from the ultrasonic dispersion curve

Niven Brown, Manuel Melon, Valérie Montembault, Bernard Castagnede, Walter Lauriks, Philippe Leclaire

### ▶ To cite this version:

Niven Brown, Manuel Melon, Valérie Montembault, Bernard Castagnede, Walter Lauriks, et al.. Evaluation of the viscous characteristic length of air-saturated porous materials from the ultrasonic dispersion curve. Comptes rendus de l'Académie des sciences. Série IIb, Mécanique, 1996, 322 (2), pp.122-127. hal-01326811

## HAL Id: hal-01326811 https://hal.science/hal-01326811

Submitted on 6 Jun 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License

# Evaluation of the viscous characteristic length of air-saturated porous materials from the ultrasonic dispersion curve

Niven BROWN, Manuel MELON, Valérie MONTEMBAULT, Bernard CASTAGNEDE, Walter LAURIKS and Philippe LECLAIRE

N. B., B. C., M. M. and V. M. : Laboratoire d'Acoustique, URA CNRS 1101, Université du Maine, avenue Olivier-Messiaen, 72017 Le Mans Cedex, France; W. L. and P. L. : Laboratorium voor Akostiek en Thermische Fysica, Katholieke Universiteit Leuven Celestijnenlaan 200 D, B-3001 Leuven, Belgium.

Abstract. This Note describes a method to determine the viscous characteristic length  $\Lambda$  from an analysis and a linear regression of the dispersion curve. This approach is valid in the high frequency domain, above 20 kHz, where some asymptotic expansions simplify the theoretical equations. It is shown that there is a linear relationship between the squared propagation index and the inverse of the square root of the frequency which has a slope proportional to  $\Lambda$ , the thermal characteristic length  $\Lambda'$  and some physical constants. The value of  $\Lambda'$  is determined using the Brunauer, Emmet and Teller (BET) method. Low frequency ultrasound, in the 40-200 kHz range, is used to perform the experiments. The computation of the dispersion curve from the experimental waveforms is done by using the phase spectrum method, as was outlined in a previous Note, *i.e.*, Brown *et al.*, *C.R. Acad. Sci. Paris*, 319, Series II, 1994, p. 393.

#### Évaluation de la longueur caractéristique visqueuse de matériaux poreux saturés par l'air à l'aide de la courbe de dispersion ultrasonore

Résumé. La présente Note discute une méthode de détermination de la longueur caractéristique visqueuse  $\Lambda$ , à partir d'une analyse et d'une régression linéaire sur la courbe de dispersion. Cette approche est rendue plus aisée dans le domaine à hautes fréquences, au-dessus de 20 kHz, où des développements asymptotiques permettent de simplifier les équations théoriques. Il est montré que le carré de l'indice de réfraction en fonction de l'inverse de la racine carrée de la fréquence est une droite de pente donnée par une combinaison de  $\Lambda$ , et d'autres paramètres physiques dont  $\Lambda'$ , la longueur caractéristique thermique. Il faut donc avoir une connaissance au préalable de  $\Lambda'$  pour pouvoir déterminer  $\Lambda$ . Cette mesure de  $\Lambda'$  est réalisée avec la méthode BET. Les expériences sont réalisées à l'aide d'ultrasons de basses fréquences (dans la gamme 40-200 kHz). Les courbes de dispersion sont obtenues à partir de la méthode du spectre de phase, comme cela était décrit dans une Note antérieure, Brown et al., C.R. Acad. Sci. Paris, 319, série II, 1994, p. 393.

#### Version française abrégée

La métrologie des paramètres physiques des matériaux acoustiques est étudiée activement au Mans, notamment avec l'aide de plusieurs techniques ultrasonores basse fréquence. Une méthode de détermination de la tortuosité à partir de simples mesures de vitesse fut proposée puis appliquée pour caractériser l'anisotropie de mousses plastiques (Melon, 1995). Un travail sur la dispersion ultrasonore des matériaux acoustiques fut initié récemment (Brown, 1994), s'appuyant sur un algorithme classique portant sur le spectre de phase décrit par Sachse (1978). Cette dispersion est faible mais significative (cf. figure 3 dans Brown, 1994).

La présente Note s'intéresse à la possible détermination des longueurs caractéristiques à partir de la courbe de dispersion en utilisant les prédictions du modèle d'Allard-Champoux (Allard, 1993). La longueur caractéristique visqueuse  $\Lambda$  fut introduite par Johnson (1987). Elle est définie comme le rapport des carrés de la vitesse dans le pore et à sa surface. Par extension, Allard introduisit le concept de longueur caractéristique thermique  $\Lambda'$  (Allard, 1993). Il est remarquable de noter que  $\Lambda' = 2$ V/S, où V et S respectivement représente le volume et la surface d'un pore donné. Du fait de cette relation  $\Lambda'$  peut être déterminé à l'aide de la méthode de Brunauer, Emmet et Teller, ou méthode BET (Brunauer, 1938), et ceci fut effectivement mis en œuvre pour des matériaux acoustiques (Lemarinier, 1995). Il faut de plus noter que dernièrement des mesures de  $\Lambda'$  ont été effectuées par diffusion magnétique (Hurlimann, 1994).

La vitesse du son est fournie par :  $c(\omega) = \sqrt{K/\rho}$ , où le coefficient de compressibilité K et la masse volumique de l'air sont exprimées grâce aux équations (1) à (4) tirées de l'ouvrage de Allard. Dans ces expressions  $\gamma$  représente la constante adiabatique,  $P_0$  la pression atmosphérique,  $B^2$  le nombre de Prandtl,  $\phi$  la porosité,  $\alpha_{\infty}$  la tortuosité,  $\omega = 2\pi f$  la pulsation,  $\sigma$  la résistance au passage de l'air,  $\rho_0$  la masse volumique de l'air au repos,  $\eta$  la viscosité de l'air, et c' un facteur de forme égal à 1 pour des pores cylindriques de section simple. La limite asymptotique haute fréquence (la fréquence limite est visualisée à l'aide d'une simulation numérique sur la figure 1) permet d'exprimer à l'aide des développements fournis dans l'équation (5) la vitesse de propagation de l'équation (6), dans laquelle on retrouve l'épaisseur de peau visqueuse  $\delta = \sqrt{2\eta/\rho_0 \omega}$ , et la vitesse du son dans l'air  $c_0 = \sqrt{\gamma P_0/\rho_0}$ .

L'indice de réfraction acoustique  $n = c_0/c(\omega)$  est proportionnel à  $1/\sqrt{\omega}$ , si bien que la courbe  $n_r^2 = n_r^2 (1/\sqrt{\omega})$  est une droite dans la limite haute fréquence tout du moins. A l'aide d'une simple régression linéaire on obtient donc à la fois une estimation de la tortuosité par l'ordonnée à l'origine (pour  $\omega \to \infty$ , soit  $1/\sqrt{\omega} \to 0$ ), et de  $\Lambda'$  qui peut être évaluée à partir de la pente, comme cela est visible sur l'équation (7). Les paramètres  $\gamma$  et  $B^2$  de l'air étant connus par ailleurs ( $\gamma = 1,400$  et  $B^2 = 0,706$ ), la détermination de  $\Lambda$  est possible à partir de la connaissance de celle de  $\Lambda'$  obtenue par la méthode BET.

Des résultats expérimentaux significatifs sont rassemblés sur les figures 2 et 3. La procédure pour obtenir la courbe de dispersion expérimentale à partir d'une instrumentation ultrasonore, basse fréquence et large bande, est décrite dans Brown (1994). Le résultat de la régression linéaire sur la courbe  $n_r^2 = n_r^2 (1/\sqrt{\omega})$ , prédit par l'équation (7), est illustré sur la figure 2 pour une mousse plastique Recticel. Le comportement linéaire est vérifié sur cet exemple dans la gamme 40-160 kHz. Dans d'autres cas, il peut exister à hautes fréquences des écarts qui sont certainement dus à des phénomènes de diffusion (la longueur d'onde n'étant plus grande devant la dimension moyenne des pores). Des erreurs systématiques de ce type sont visualisées sur la figure 3 présentant des mesures du coefficient de transmission à des fréquences discrètes en régime entretenu (le rapport des spectres d'amplitudes des deux signaux impulsionnels) sur le même matériau Recticel. Lorsque la valeur  $\Lambda = 2,1.10^{-4}$  m est utilisée dans la prédiction théorique, la courbe d'atténuation passe au-dessus des points expérimentaux. Il faut prendre une valeur plus faible,  $\Lambda = 1,8.10^{-4}$  m, pour avoir une comparaison théorie/expérience qui soit satisfaisante.

La méthode présentée dans cette Note permet d'évaluer correctement la longueur caractérisitique visqueuse  $\Lambda$  lorsque  $\Lambda'$  est connue *a priori*. Il s'agit d'une approche nouvelle par rapport à celle utilisant le deuxième son, décrite pour les roches sableuses saturées d'eau (Johnson, 1994). Des progrès restent à accomplir au niveau du traitement du signal, car la procédure du spectre de phase est très sensible au fenêtrage et à la présence de bruit. Dernièrement, cette méthode a été appliquée avec deux gaz différents saturant les matériaux poreux, ce qui permet d'obtenir simultanément  $\Lambda$  et  $\Lambda'$  (Leclaire, 1996).

#### 1. Introduction

The metrology of the physical parameters of the so-called "acoustical materials" (e.g., various airsaturated structures such as plastic foams, synthetic felts, fibrous mats, and the like, which are used to reduce noise) is actively pursued in Le Mans (France). Low frequency ultrasonic methods have recently been introduced to study these materials and they have demonstrated many significant advances in the field. For instance, a method to measure the tortuosity from simple wavespeed measurements was proposed, and then applied to characterize the anisotropy of plastic foams (Melon, 1995). An experimental study of the dispersion of ultrasonic waves in air-saturated materials has recently been described (Brown, 1994). It is based on the phase spectrum method originally introduced in the 1970s (Sachse, 1978). Such dispersion in air-saturated materials is generally small, but significant, in the 20-200 kHz frequency domain (e.g. *see* figure 3 in Brown, 1994).

This Note describes some original results for the determination of the viscous characteristic length from an analysis of the dispersion curve in the range of the high frequency asymptotic limit using the theory of the Allard-Champoux model (Allard, 1993). The shape of the dispersion curve enables the prediction of the tortuosity and the viscous characteristic length. The viscous characteristic length  $\Lambda$  is defined as the ratio of the square of the velocity field in the bulk of a given pore to the velocity field at its surface for an inviscid fluid under steady flow. The viscous skin depth  $\delta$ , which is a function of the inverse square root of the frequency, becomes very thin at high frequencies. Similarly, the concept of the thermal characteristic length  $\Lambda'$  was proposed by Allard (1993). This parameter is given by the relation  $\Lambda' = 2 V/S$ , where V is the volume of a pore and S is the contact area between the frame and the saturating fluid. The ratio V/S can be measured using a non-acoustical technique, the Brunauer, Emmet, Tellet (BET) method, which is commonly used in physical chemistry (Brunauer, 1938). It has been used recently for measuring  $\Lambda'$  in air-saturated acoustical materials (Lemarinier, 1995). Additionally, magnetic diffusion has been proposed to determine  $\Lambda'$  on sedimentary rocks, but the results so far are quite inaccurate when compared to BET measurements (Hurlimann, 1994).

#### 2. High-frequency asymptotic expressions

The speed of sound in the air saturating the porous medium is given by the usual relationship:  $c(\omega) = \sqrt{K/\rho}$ . The general expressions of the frequency dependent complex density of the fluid  $\rho$  and the bulk modulus K are provided in Allard (1993), p. 92:

(1) 
$$K = \gamma P_0 / \left[ \gamma - (\gamma - 1) \left\{ 1 + \frac{\sigma' \phi}{j B^2 \omega \rho_0 \alpha_\infty} G'_J (B^2 \omega) \right\}^{-1} \right],$$

(2) 
$$\rho = \alpha_{\infty} \rho_0 \left[ 1 + \frac{\sigma \phi}{j \, \omega \rho_0 \, \alpha_{\infty}} \, G_J(\omega) \right],$$

where

(3) 
$$G_J(\omega) = \sqrt{\left(1 + \frac{4j \,\alpha_\infty^2 \,\eta \rho_0 \,\omega}{\sigma^2 \,\Lambda^2 \,\phi^2}\right)},$$

and

(4) 
$$G'_{J}(B^{2}\omega) = \sqrt{\left(1 + \frac{4 j \,\alpha_{\infty}^{2} \,\eta \rho_{0} \,\omega \,B^{2}}{c'^{4} \,\sigma^{2} \,\Lambda'^{2} \,\phi^{2}}\right)}.$$

In these expressions  $\gamma$  represents the specific heat ratio,  $P_0$  the atmospheric pressure,  $B^2$  the Prandtl number,  $\phi$  the porosity,  $\alpha_{\infty}$  the tortuosity,  $\omega = 2\pi f$  the angular frequency,  $\sigma$  the air flow resistivity,  $\rho_0$  the air density at rest,  $\eta$  the air viscosity and  $\Lambda$  and  $\Lambda'$  the viscous and thermal characteristic lengths. The parameter c' is a form factor which for cylindrical pores having a circular cross-section is equal to one and which is close to one for other simple cross-sectional shapes.

At high frequencies, where the viscous skin depth is smaller than the pore size, *i.e.*, above a few 10 kHz, one can make a simple asymptotic development of the  $G_J(\omega)$  and  $G'_J(B^2\omega)$  functions:

(5) 
$$G_J(\omega) = \sqrt{2 \eta \rho_0 \omega} (1+j) \frac{\alpha_\infty}{\sigma \Lambda \phi}; \qquad G'_J(B^2 \omega) = \sqrt{\frac{2 \rho_0 \omega}{\eta}} (1+j) \frac{B \Lambda'}{8}.$$

The actual value of the frequency limit (in the range of 10 kHz) can be unambiguously obtained by the use of a numerical simulation with and without the implementation of the approximation. Figure 1 presents some results of such a simulation for a Recticel plastic foam. Using equations (5), the speed of sound in the air saturating the porous medium,  $c(\omega)$ , is then given, after some simple algebraic calculations, by the following equation:

(6) 
$$c(\omega) = \frac{c_0}{\sqrt{\alpha_{\infty}}} \left[ 1 - \frac{\delta(1-j)}{2} \left\{ \frac{\gamma - 1}{B\Lambda'} + \frac{1}{\Lambda} \right\} \right]$$

with  $\delta = \sqrt{2\eta/\rho_0 \omega}$ , the viscous skin depth, and  $c_0 = \sqrt{\gamma P_0/\rho_0}$ , the speed of sound in air. The next step is to introduce the acoustical index of refraction *n* and the tortuosity  $\alpha_{\infty}$  as given by:  $n = c_0/c(\omega); \ \alpha_{\infty} = \lim_{\omega \to \infty} (c_0/c(\omega))^2.$ 

- Fig. 1. Wavespeed in the fluid saturating the porous material at normal incidence. —, no approximation; – –, approximation from equation (6). The parameters used for the calculation are:  $\alpha_{\infty} = 1.2$ ,  $\phi = 0.98$ ,  $\sigma = 4.000$  N m<sup>4</sup> s,  $\Lambda = 1.2 \times 10^{-4}$  m.  $\Lambda' = 5.0 \times 10^{-4}$  m. These values are common for reticulated foams.
- Fig. 1. Vitesse de propagation dans le fluide du matériau poreux à incidence normale. ––– : pas d'approximation, – – – : approximation de l'équation (6). Les paramètres utilisés pour les calculs sont :  $\alpha_{\infty} = 1.2$ :  $\phi = 0.98$ :  $\sigma = 4~000$  N m<sup>4</sup> s.  $\Lambda = 1.2 \cdot 10^{-4}$  m.  $\Lambda' = 5.0 \cdot 10^{-4}$  m. Ces valeurs sont tout à fait caractéristiques pour des mousses réticulées.



The squared propagation index,  $n_r = \text{Re}(n)$ , is then expressed by:

(7) 
$$n_r^2 = \alpha_{\infty} \left[ 1 + \delta \left\{ \frac{\gamma - 1}{B \Lambda'} + \frac{1}{\Lambda} \right\} \right]$$

From the above equation it is evident that the curve  $n_r^2 = n_r^2 (1/\sqrt{\omega})$  is, theoretically, a straight line in the high frequency limit. A simple linear regression thus provides both the tortuosity, which is the coordinate at the origin (for  $\omega \to +\infty$ , *i.e.*,  $1/\sqrt{\omega} \to 0$ ), and  $\Lambda'$  which can be evaluated from the slope. The parameters  $\eta$ ,  $\rho$ ,  $\gamma$ ; and  $B^2$  for air are given in any physics and chemistry handbook ( $\eta = 1.84 \times 10^{-5}$  kg/(m s),  $\rho = 1.205$  kg/m<sup>3</sup>,  $\gamma = 1.400$  and  $B^2 = 0.706$ ). Thus, by using the value of  $\Lambda'$  determined by the BET technique, the linear regression provides a potential method to obtain the viscous characteristic length,  $\Lambda$ . This approach constitutes a convenient alternative method to the one proposed by Johnson (1994 *a*, *b*) based on second sound which has been used for the characterization of sandstone specimens.

#### 3. Experimental results

The procedure to obtain the experimental dispersion curve at low ultrasonic frequencies has been described by Brown (1994). In order to gain access to a sufficient spectral domain, broad-band piezoelectric transducers were used. The measurements are significant only over the spectrum of the transmitted pulse, generally extending from 20 to 250 kHz at - 6 dB (as seen, for instance, in figure 2 of the same reference). This spectrum is the convolution of the bandwidth of the transducers by the transfer function of the porous material which acts as a low-pass filter.

The linear regression on the curve  $n_r^2 = n_r^2 (1/\sqrt{\omega})$ , made clear from the use of equation (7), is outlined as an example in figure 2. The results are quite acceptable. However, for some other materials, at high frequencies the experimental curve deviates from a straight line, because the propagation of the ultrasonic waves is no longer in the homogenized regime (where the wavelength is greater than the average pore size), but instead is governed by diffusion mechanisms. On the other hand, at low frequencies (below 20 kHz) there also exists a discrepancy with the linear behaviour. This domain has not been represented on the curve because it extends outside the bandwidth of the transducers where the experimental results do not provide sufficient accuracy. This part of the dispersion curve, however, should be interesting because it is there that the dispersion is most pronounced. In terms of the model, one should not use the high frequency asymptotic developements, but instead start with the initial set of equations (1) to (4).



Fig. 2. – A characteristic example for the linear fit  $n_r^2 = n_r^2 (1/\sqrt{\omega}) \approx \alpha_{\infty}$  for a Recticel plastic foam. The thermal characteristic length  $\Lambda'$  determined by the BET method is  $\Lambda' = 6.1 \times 10^{-4}$  m. The recovered parameters from the regression are:  $\alpha_{\infty} = 1.046$ ,  $\Lambda = 2.1 \times 10^{-4}$  m.

- Fig. 2. Un exemple caractéristique pour la régression linéaire  $n_r^2 = n_r^2 (1/\sqrt{\omega}) \approx \alpha_{\infty}$  pour une mousse Recticel. La dimension caractéristique thermique  $\Lambda'$  déterminée par la méthode BET est  $\Lambda' = 6.1 \cdot 10^{-4}$  m. Les paramètres obtenus à partir de la régression sont :  $\alpha_{\infty} = 1.046$ ,  $\Lambda = 2.1 \cdot 10^{-4}$  m.
- Fig. 3. Measurements of the transmission coefficient for a Recticel plastic foam at discrete frequencies and comparison with theory for two values of  $\Lambda$ . ——, exact theory, for which  $\Lambda = 2.1 \times 10^{-4}$  m; –, fitted theory, for which  $\Lambda = 1.8 \times 10^{-4}$  m.
- Fig. 3. Mesures du coefficient de transmission pour une mousse Recticel à des fréquences discrètes et comparaison avec la théorie pour deux valeurs de  $\Lambda$ . : théorie exacte, pour laquelle  $\Lambda' = 2,1\cdot10^{-4}$  m, – : théorie avec ajustement, pour laquelle  $\Lambda' = 1.8\cdot10^{-4}$  m.

Some systematic errors may occur in the measurements of transmission. An example is given in figure 3, showing the coefficient of transmission versus frequency. The experimental results were obtained from the ratio of the magnitudes of fast Fourier transforms of transmitted pulses with and without the material present. The comparison with theory was done with a model making use of some asymptotic approximations which are valid in the 20-100 kHz bandwidth of figure 3. When the expected value of the characteristic length, i.e.  $\Lambda = 2.1 \times 10^{-4}$  m is used, the predicted transmission curve versus frequency is slightly above the experimental data. It is only when  $\Lambda$  is modified to a smaller value, *i.e.*  $\Lambda = 1.8 \times 10^{-4}$  m, that the agreement between theory and experiment is satisfactory. Consequently, the experimental transmission is too weak, because some losses are not taken into account. The difference between the two values of  $\Lambda$  is, however, small (in the range of 15%). These measurements show that the order of the expected value of  $\Lambda = (2 \times 10^{-4} \text{ m})$  is obtained as confirmed from the results of figure 2. The ultrasonic transmission is too weak due to some diffusion processes existing above 20 kHz, and to some geometrical losses along the acoustical propagation paths. It should be noted that the value of the form factor c' was taken to be equal to one, which is the value for cylindrical pores with a circular cross-section. This value gives reasonable results for the foam tested here, but may vary for other types of foams.

#### 4. Conclusions

In this Note, original results concerning the evaluation of the viscous characteristic length  $\Lambda$  for airsaturated materials have been demonstrated. It has been shown that a simple linear regression program enables  $\Lambda$  to be obtained from the dispersion curve using a standard phase spectrum algorithm. Some difficulties were encountered with the experiments, mainly because the dispersion curve is quite sensitive to noise and the signal processing procedures. The reproducibility of the method and the signal processing schemes need to be improved to make the technique more robust. Although the proposed method relies on the fact that *a priori* knowledge of the thermal characteristic length  $\Lambda'$  is needed to obtain  $\Lambda$ , this work constitutes some preliminary steps towards the ultrasonic determination of these quantities. Recently the same method using two different gases saturating the porous media has been proposed to simultaneously measure the two characteristic lengths (Leclaire, 1995).

#### References

- Allard J. F., 1993. Propagation of sound in porous media: Modelling sound absorbing materials, Chapman and Hall, London. Brown N., Castagnede B., Lauriks W. and Melon M., 1994. Experimental study of the dispersion of ultrasonic waves in porous materials, C. R. Acad. Sci. Paris, 319, Series II, pp. 393-399.
- Brunauer S., Emmett P. H. and Teller E., 1938. Adsorption of gases in multi-molecular layers, J. Am. Chem. Soc., 60, pp. 309-319.
- Hurlimann M. D., Helmer K. G., Latour L. L. and Satak C. H., 1994. Restricted diffusion in sedimentary rocks. Determination of surface-area-to-volume ratio and surface relaxitity, J. Magn. Res., A111, pp. 169-178.
- Johnson D. L., Koplik J. and Dashen R., 1987. Theory of dynamic permeability and tortuosity in fluid-saturated porous media, J. Fluid Mechanics, 176, pp. 379-402.
- Johnson D. L., Hemmick D. L. and Kojima H., 1994a. Probing porous media with first and second sound. I. Dynamic permeability, J. Appl. Phys., 76, pp. 104-114.
- Johnson D. L., Plona T. J. and Kojima H., 1994b. Probing porous media with first and second sound. II. Acoustic properties of water-saturated porous media, J. Appl. Phys., 76, pp. 115-125.
- Leclaire P., Kelders L., Lauriks W., Melon M., Castagnede B. and Brown N., 1996. Determination of the characteristic lengths of plastic foams by ultrasonic measurements in helium and air, J. Appl. Phys. (submitted).
- Lemarinier P., Henry M., Allard J. F., Bonardet J. L. and Gedeon A., 1995. Connection between the dynamic bulk modulus of air in a porous medium and the specific surface, J. Acous. Soc. Amer., 97, pp. 3478-3482.
- Melon M., Lafarge D., Castagnede B. and Brown N., 1995. Measurement of tortuosity of anisotropic acoustic materials, J. Appl. Phys., 78, pp. 4929-4933.
- Sachse W. and Pao Y. H., 1978. On the determination of phase and group velocities of dispersive waves in solids, J. Appl. Phys., 49, pp. 4320-4327.