

УДК 544.774.4:538.956

ИССЛЕДОВАНИЕ ЭЛЕКТРОКОНВЕКЦИИ В МАГНИТНЫХ ЖИДКОСТЯХ МЕТОДОМ ДИНАМИЧЕСКОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА

© 2024 г. К. В. Ерин¹, *, И. В. Еськова¹

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Северо-Кавказский федеральный университет», Физико-технический факультет, Ставрополь, Россия

*E-mail: exiton@inbox.ru

Поступила в редакцию 22.01.2024

После доработки 29.04.2024

Принята к публикации 28.06.2024

Экспериментально исследована электроконвекция в магнитных жидкостях на основе керосина методом динамического рассеяния света. Обнаружено уменьшение времени релаксации автокорреляционной функции при различных напряжениях и межэлектродных расстояниях. По экспериментальным данным определены зависимости максимальной скорости хаотического электроконвективного движения от напряжения на электродах и расстояния между ними.

Ключевые слова: электроконвективные течения, магнитные жидкости, динамическое рассеяние света, объемный заряд

DOI: 10.31857/S0367676524100152, EDN: DSLHRO

ВВЕДЕНИЕ

При воздействии электрического поля в магнитных жидкостях наблюдается комплекс физических эффектов, связанных с нарушением агрегативной устойчивости, образованием упорядоченных структур различного типа из коллоидных частиц [1–2], развитием электроконвективной неустойчивости [3–4], распространением концентрационных волн [5], возникновением анизотропии оптических свойств [6] и др.

Широко известным эффектом, наблюдающимся в жидких диэлектриках под действием электрического поля, является развитие электрогидродинамической неустойчивости, приводящей к появлению в жидкости интенсивных электроконвективных течений [7]. Физическая природа таких течений связана с появлением объемной силы, действующей со стороны электрического поля на приэлектродный объемный заряд. В последние два десятилетия исследованиям и особенно компьютерному моделированию электрогидродинамических течений посвящены десятки работ [8–10]. Особенность электрогидродинамических течений в коллоидах и, в том числе, в магнитных жидкостях в том, что течения способствуют возникновению агрегативных структур [1,3,11]. Информация об интенсивности электрогидродинамических течений в магнитных жидкостях и факторах, на нее влияющих, является важной для понимания механизмов электрофизических процессов в таких системах.

Благодаря зависимости оптических эффектов в коллоидах от концентрации частиц, температуры, величины внешнего поля и оптических параметров материалов, исследования таких эффектов дают широкий набор инструментов для изучения свойств частиц и их структурирования [12, 13], а также для создания сенсоров дистанционного контроля электрических и магнитных полей [14].

Целью настоящей работы является исследование процессов хаотической электроконвекции в магнитных жидкостях при различных напряжениях и межэлектродных расстояниях методом динамического рассеяния света.

ЭКСПЕРИМЕНТ

Для исследования процессов хаотической электроконвекции использовалась магнитная жидкость типа магнетит в керосине с объемной концентрацией твердой фазы 0.01 % (производитель — НИПИ Газпереработки, г. Краснодар). Использовался спектрометр динамического рассеяния света PhotocorComplex, который позволяет изучать макромолекулярные и коллоидные системы методами динамического и статического рассеяния света в широком диапазоне углов рассеяния 10° – 150° . Для измерений была сконструирована специальная цилиндрическая ювета с внутренним диаметром 8 мм с встроенными латунными электродами, расстояние между которыми можно было изменять.

В настоящее время метод квазиупругого или динамического рассеяния света (англ. dynamic light scattering, DLS) широко используется для исследований дисперсных систем различной природы [15, 16]. Физической основой метода является измерение флуктуаций интенсивности света, рассеянного малым объемом коллоидного раствора на угол θ . Флуктуации интенсивности рассеянного света связаны с поступательным и вращательным броуновским движением частиц, а также отдельных частей структурно-сложных объектов, например, полимерных цепей. Из частотного спектра флуктуаций можно получить информацию о коэффициенте диффузии коллоидных частиц, который, в свою очередь, зависит от их размеров. Современные приборы, предназначенные для исследования DLS, обычно измеряют не спектр флуктуаций, а автокорреляционные функции (АКФ) интенсивности рассеянного света и электрического поля рассеянной волны:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I \rangle^2}, \quad |g^{(1)}(\tau)| = \frac{\langle E(t)E(t+\tau) \rangle}{\langle E \rangle^2}. \quad (1)$$

АКФ первого и второго порядка связаны между собой соотношением Зигерта [17]:

$$g^{(2)}(\tau) = A \left(1 + \beta |g^{(1)}(\tau)|^2 \right), \quad (2)$$

где β — фактор когерентности, определяемый свойствами лазерного пучка и настройками оптической установки, A — константа, обычно близкая к единице. Для броуновских частиц автокорреляционная функция экспоненциально затухает во времени, и характерное время релаксации однозначно связано с коэффициентом диффузии частиц. В случае монодисперсного раствора невзаимодействующих сферических частиц АКФ представляет собой экспоненту со временем затухания Γ^{-1} :

$$g^{(1)}(\tau) \sim \exp(-\Gamma\tau). \quad (3)$$

Параметр $\Gamma = D_t q^2$ определяется коэффициентом диффузии коллоидных частиц и геометрией эксперимента $q = 4\pi \sin(\theta/2)/\lambda$. В наших экспериментах использовался лазер с длиной волны $\lambda = 650$ нм, регистрировался свет, рассеянный на угол $\theta = 90^\circ$. Изучение спектральных или корреляционных характеристик флуктуаций интенсивности позволяет определить коэффициент поступательной броуновской диффузии частиц $D_t = kT/6\pi\eta R$, а при измерении деполяризованного света и вращательной диффузии — $D_r = kT/8\pi\eta R^3$. Метод динамического рассеяния света позволяет исследовать полидисперсные системы. В этом случае анализируется АКФ полидисперсной системы:

$$g^{(1)}(t) = \int_0^\infty G(\Gamma) \exp(-\Gamma t) d\Gamma, \quad (4)$$

где $G(\Gamma)$ — функция распределения по обратным временам релаксации АКФ. Уравнение (4) является уравнением Фредгольма первого рода с достаточно простым экспоненциальным ядром. Мы использовали программу DynaLS для решения уравнений и восстановления функции распределения частиц по размерам. Это программное обеспечение реализует метод регуляризации. Результатом вычисления является функция $F(R)$ распределения по размерам оптических вкладов различных фракций частиц.

Метод динамического рассеяния света можно использовать для исследования не только хаотического броуновского движения, но и для упорядоченного движения коллоидных частиц под действием электрического поля. Такую модификацию называют электрофоретическим рассеянием света [18]. Для частиц, движущихся в вязкой среде с постоянной скоростью v , АКФ будет иметь вид:

$$g^{(2)}(t) = \exp(-2\Gamma t) \exp(2iqv \cos(\theta/2)t), \quad (5)$$

Измерение скорости движения частиц в электрическом поле позволяет измерить важные в коллоидной химии параметры — электрофоретическую подвижность μ и ζ (дзета)-потенциал частиц. В случае электрофоретического движения частиц скорость движения связана с подвижностью и напряженностью электрического поля, действующего на частицу: $v = \mu E$. Однако движение частиц в коллоиде может быть вызвано не только электрофорезом, но и течением жидкой основы под действием электрического поля. Особенно этот эффект будет выражен в коллоидах на основе жидких диэлектриков, в которых коллоидные частицы электрически нейтральны. Таким образом, метод динамического рассеяния света позволяет успешно исследовать электроконвективные течения.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

На рис. 1 представлены АКФ рассеянного света в магнитной жидкости под действием электрического поля небольшой напряженности (0.3 МВ/м) и в отсутствие поля. Анализ автокорреляционных функций показывает, что поля подобной величины способствуют росту агрегатов, размер которых может достигать 1—10 мкм. При этом интенсивность рассеянного магнитной жидкостью света возрастает. Изменение интенсивности рассеянного света может быть очень значительным и достигать 5—8 раз в полях до 0.5—0.7 МВ/м особенно в свежеразбавленных магнитных жидкостях, не подвергавшихся ранее воздействию электрического поля. Формы АКФ существенно меняются при повышении напряжения между электродами. На рис. 2 представлены автокорреляционные функции для различных напряжений при межэлектродном расстоянии 2 мм. Видно, что характерное время спада функции уменьшается примерно на порядок при

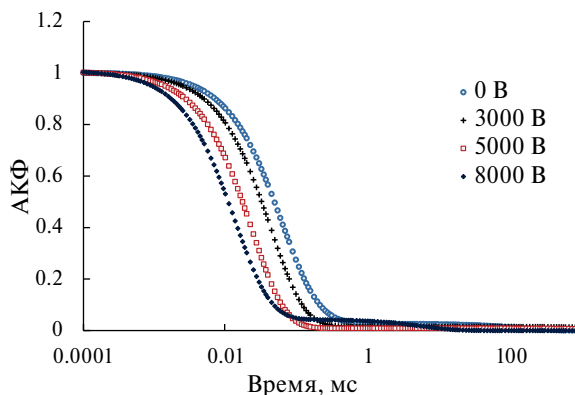


Рис. 1. Изменение формы автокорреляционных функций при увеличении напряжения между электродами (межэлектродное расстояние 5 мм).

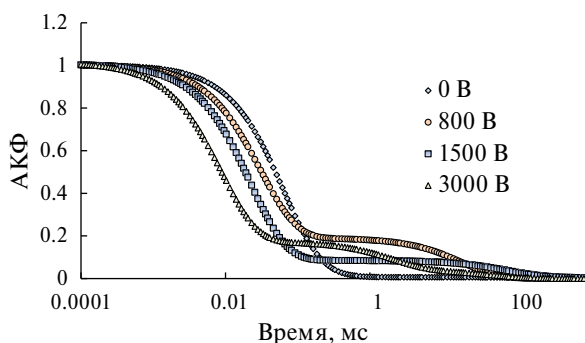


Рис. 2. Изменение формы автокорреляционных функций при увеличении напряжения между электродами (межэлектродное расстояние 2 мм).

увеличении напряжения до 3 кВ. Классическая интерпретация таких функций приводит к выводу об уменьшении характерного размера частиц до 1 нм и менее. Физически это представляется невероятным. Однако такой же эффект значительного уменьшения постоянной времени автокорреляционной функции можно объяснить и с других позиций. Уменьшение постоянной времени может быть связано с тем, что частицы магнитной жидкости помимо броуновского движения участвуют еще в одном достаточно быстром движении, также имеющем хаотический характер. Таким движением может быть электроконвекция, возникающая в жидких диэлектриках при достаточно высоких напряжениях между электродами.

Причиной развития электроконвективных течений в жидких диэлектриках является действие объемной силы:

$$f = \rho E - \frac{1}{2} \epsilon_0 E^2 \nabla \epsilon + \frac{1}{2} \epsilon_0 \nabla \left(\rho \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} E^2 \right), \quad (6)$$

где ρ — объемная плотность электрического заряда. Обычно учитывают только первое слагаемое, т. к. слагаемыми, описывающим дипольфорез и переопределяющим давление в диэлектрике можно пренебречь [10]. Действие объемной силы может вызывать циркулирующее движение жидкости, т. к. ротор объемной силы не равен нулю:

$$\text{rot } f = \rho \text{rot } E + \nabla \rho \times E = \nabla \rho \times E. \quad (7)$$

Такое движение возникает в случае, когда $\nabla \rho \uparrow \downarrow E$ [18].

В работах, посвященных теоретическому описанию и компьютерному моделированию процессов электроконвекции, для определения ее характерных режимов предлагается использовать безразмерное электрическое число Рэлея [19]:

$$Ra_e = \frac{\epsilon \epsilon_0 U}{\mu \eta}, \quad (8)$$

где μ — подвижность носителей заряда, η — динамическая вязкость. В зависимости от значения числа Рэлея выделяют статический режим ($Ra_e < 300$), режим устойчивых колебаний ($Ra_e = 300—500$) и хаотический режим ($Ra_e > 700$). Оценки числа Рэлея для магнитной жидкости в использованном нами диапазоне напряжений дает значения $Ra_e \approx 600—10000$. Таким образом, при достаточно высоких напряжениях в системе вполне возможно развитие хаотической электроконвекции, при которой потоки несущей жидкости увлекают за собой частицы магнетита. При этом движение частиц становится более интенсивным, чем при броуновском движении.

Электроконвективное движение коллоидных частиц можно учесть при расчете АКФ по формуле (4) следующим образом:

$$g^{(2)}(t) = \exp(-2\Gamma t) \text{Re} \left(\int_{v_{\min}}^{v_{\max}} f(v) \exp(2iqv \cos(\theta/2)t) dv \right). \quad (9)$$

Здесь $f(v) = \gamma / \pi(v^2 + \gamma^2)$ — функция распределения электроконвективных течений по скоростям. В качестве такой функции целесообразно выбрать распределение Коши, которое успешно применяется для описания турбулентных течений, близких по характеру к электроконвективным.

На рис. 3 представлены результаты расчета АКФ по формуле (9), учитывающего хаотическую электроконвекцию с характерным параметром $\gamma = 2.4$ мм/с, в сравнении с экспериментом. Можно видеть очень хорошее согласие расчетной формы АКФ с экспериментом. Анализ экспериментальных АКФ при различных напряжениях и межэлектродных расстояниях позволяет оценить максимальную скорость

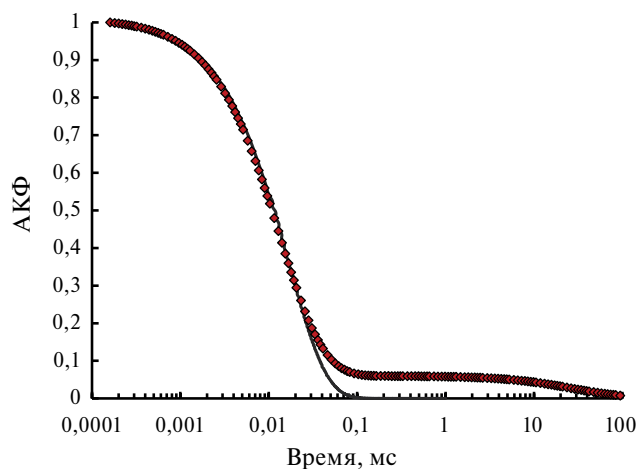


Рис. 3. Автокорреляционные функции в электрическом поле (напряжение 2 кВ, межэлектродное расстояние 2 мм). Точки — эксперимент, линия — расчет по формуле (3) при $\gamma=2.4$ мм/с.

электроконвекции в зависимости от напряжения между электродами. Под максимальным значением скорости электроконвекции мы понимаем величину $|\langle v \rangle|$, т. к. такие границы в распределении Коши покрывают 90 % всех возможных скоростей. На рисунке 4 представлены зависимости максимальной скорости электроконвективных течений в зависимости от напряжения между электродами для расстояний 2 и 5 мм. Зависимости имеют практически линейный характер, причем их экстраполяция показывает наличие пороговых напряжений развития электроконвекции для различных межэлектродных расстояний, что согласуется с известными данными по изучению электрогидродинамических течений в магнитных жидкостях в тонких слоях [11].

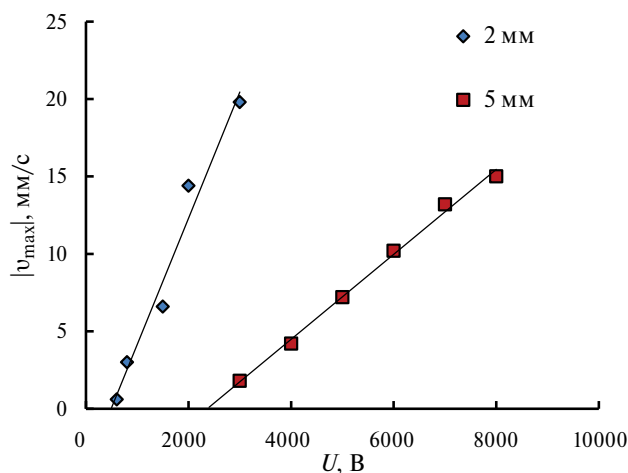


Рис. 4. Зависимость максимальной скорости ЭГД-течений от напряжения между электродами.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследование магнитных жидкостей на основе керосина в электрическом поле методом динамического рассеяния света показало как наличие признаков агрегирования частиц в полях небольшой напряженности, так и существенное уменьшение характерного времени релаксации АКФ, которое может быть связано интенсивным движением наночастиц магнетита, имеющим неброуновский характер. Причиной такого движения может быть электроконвекция в хаотическом режиме. Определены зависимости максимальной скорости электроконвективного движения от напряжения и расстояния между электродами. Определены критические напряжения возникновения электроконвекции для различных межэлектродных расстояний.

Работа выполнена при поддержке государственного задания Минобрнауки России на выполнение научно-исследовательских работ (проект FSRN-2023-0006) с использованием оборудования Центра коллективного пользования Северо-Кавказского федерального университета при финансовой поддержке Минобрнауки России (уникальный идентификатор проекта RF-2296.61321X0029, соглашение № 075-15-2021-687).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Диканский Ю.И., Нечаева О.А. // Коллоид. журн. 2003. Т. 65. № 3. С. 338; *Dikanskii Yu.I., Nechaeva O.A. // Colloid J. 2003. V. 65. No. 3. P. 305.*
2. Yerin C.V., Padalka V.V. // J. Magn. Magn. Mater. 2005. V. 289. P. 105.
3. Диканский Ю.И., Закинян А.Р., Коробов М.И. // Коллоид. Журн. 2015. Т. 77. № 1. С. 16; *Dikanskii Y.I., Zakinyan A.R., Korobov M.I. // Colloid J. 2015. V. 77. No. 1. P. 16.*
4. Кожевников В.М., Чуенкова И.Ю., Данилов М.И., Ястребов С.С. // ЖТФ. 2008. Т. 78. № 2. С. 51; *Kozhevnikov V.M., Chuenkova I.Y., Danilov M.I. et al. // Tech. Phys. 2008. V. 53. P. 192.*
5. Ерин К.В. // Коллоид. журн. 2010. Т. 72. № 4. С. 481; *Erin K.V. // Colloid J. 2010. V. 72. No. 4. P. 486.*
6. Ерин К.В. // Опт. и спектроск. 2010. Т. 109. № 3. С. 498; *Yerin C.V. // Opt. Spectrosc. 2010. V. 109. No. 3. P. 454.*
7. Жакин А.И. // УФН. 2012. Т. 182. № 5. С. 495; *Zhakin A.I. // Phys. Usp. 2012. V. 55. No. 5. P. 465.*
8. Kim J., Davidson S., Mani A. // Micromachines. 2019. V. 10. No. 3. P. 161.
9. Davidson S.M., Wessling M., Mani A. // Sci. Reports. 2016. V. 6. Art. No. 22505.
10. Ильин В.А. // ЖТФ. 2013. Т. 83. № 1. С. 64; *Il'in V.A. // Tech. Phys. 2013. V. 58. No. 1. P. 60.*

11. *Ahmed A.M., Zakinyan A.R., Wahab W.S.A.* // Chem. Phys. Lett. 2023. V.817. Art. No. 140413.
12. *Белых С.С., Ерин К.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. № 7. С. 962; *Belykh S.S., Yerin C.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2019. V. 83. No 7. P. 878.
13. *Белых С.С., Ерин К.В., Фурсова В.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2023. Т. 87. № 3. С. 333; *Belykh S.S., Yerin C.V., Fursova V.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2023. V. 87. No 3. P. 287.
14. *Голенищев-Кутузов А.В., Голенищев-Кутузов В.А., Марданов Г.Д., Семенников А.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. № 1. С. 125; *Golenishchev-Kutuzov A.V., Golenishchev-Kutuzov V.A., Mardanov G.D. et al.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2019. V. 83. No 3. P. 353.
15. *Goldburg W.I.* // Amer. J. Phys. 1999. V. 67. No. 12. P. 1152.
16. *Иванова А.В., Никитин А.А., Абакумов М.А.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 11. С. 1580.
17. *Kokufuta E.* / In: Encyclopedia of biocolloid and bio-interface science. Hoboken, New Jersey: John Wiley & Sons Inc., 2016. P. 619.
18. *Коваленко А.В.* // Экол. вест. научн. центра ЧЭС. 2016. № 4. С. 61.
19. *Luo K., Wu J., Yi H.-L., Tan He-Ping* // Phys. Fluids. 2018. V. 30. Art. No. 023602.

Study of electroconvection in magnetic fluids by dynamic light scattering

C. V. Yerin¹, I. V. Eskova¹

¹*North Caucasus Federal University, Stavropol 355017, Russia*

Electroconvection in kerosene-based magnetic fluids was experimentally studied using the method of dynamic light scattering. A decrease in the relaxation time of the autocorrelation function was discovered at various voltages and interelectrode distances. Based on experimental data, the dependences of the maximum speed of chaotic electroconvective flows on the voltage on the electrodes and the distance between them were determined.

Keywords: electroconvective flows, magnetic fluids, dynamic light scattering, space charge