

Влияние электрического поля на динамическую вязкость жидких диэлектриков

© А.А. Остапенко

Научно-исследовательский институт радиофизики Санкт-Петербургского государственного университета, 198904 Санкт-Петербург, Россия

(Поступило в Редакцию 11 декабря 1996 г. В окончательной редакции 2 июля 1997 г.)

Рассматриваются экспериментальные зависимости динамической вязкости диэлектрических жидкостей от приложенного напряжения. Эксперимент примечателен отсутствием электрического тока через жидкость в ряде измерений, так как один из электродов изолирован от жидкости. Изменение вязкости жидких сред может быть следствием изменения структуры жидкости образования отличных от предшествующих молекулярно-ионных групп. Изменение механических свойств среды с изменением напряженности приложенного поля указывает на влияние на них зарядообразования. Рассматриваются зависимости для полярных и неполярных жидкостей.

Исследование поведения жидкого диэлектрика, подверженного воздействию поперечного электрического поля, проведенные ранее, показали, что вязкость диэлектрика меняется. Это явление, называемое "электровязкостным эффектом" описывалось разными авторами [1–3]. Но плохая воспроизводимость данных и зачастую кажущиеся противоречия в данных разных авторов не позволяли четко выделить основной механизм среди множества явлений, могущих быть причиной изменения вязкости. Таковыми представляются: передача момента количества движения посредством электрофореза ионов, ориентация полярных молекул [10], образование кластеров вблизи электрода [1,4], воздействие объемного заряда и электрогидродинамического эффекта [5]. Все авторы, несмотря на разные интерпретации явления, соглашались с необходимостью протекания электрического тока через жидкость. В ряде работ [1,2] указывалось на отсутствие упомянутого эффекта в неполярных средах. Однако отмечались существенные изменения вязкости неполярной жидкости в электрическом поле при использовании слабо очищенных жидкостей [2,7]. Это и ряд других явлений указывают на то, что причиной изменения вязкости может быть возникновение объемного заряда у электрода.

Ряд исследователей считает, что причиной изменения вязкости являются электрогидродинамические течения, возникающие в жидкостях, влияние же поля на молекулярный перенос импульса пренебрежимо мало. С другой стороны, существует точка зрения, что воздействие электрических полей может приводить к ощутимым изменениям вязкости. Основанием этому могут служить данные о влиянии электрических полей на теплопроводность [6], поскольку она, как и вязкость, является характеристикой молекулярного переноса в жидкости.

Исследование влияния зарядообразования на среду можно проводить изолировав один из электродов от жидкости, что не исключает воздействия электрического поля на среду. Известно [8], что электрогидродинамические течения при отсутствии токопрохождения через

жидкий диэлектрик не реализуются. Таким образом, изучение поведения жидкости, текущей сквозь ячейку с одним изолированным электродом, позволит исключить влияние электрогидродинамических течений, с одной стороны, и реализовать инъекцию, в другой стороны. Если же изолировать от жидкости оба электрода, то инъекции заряда не будет, реализуется лишь влияние электрического поля на жидкость.

Аппаратура и метод капиллярной вискозиметрии применялся ранее [1,2]. Схема измерительного стенда представлена на рис. 1. Время прохождения жидкого диэлектрика между отметками измерялось с помощью секундомера или фоторегистрирующего прибора с точностью до 0.1 s. Та часть установки, на которую подавалось высокое напряжение, представляет собой проточную ячейку прямоугольного сечения, помещенную в корпус из изолирующего материала (рис. 1, *b, c*). Размеры канала: длина 15 mm, ширина 3.5 mm, высота 0.7 mm. Верхняя и нижняя стенки канала представляют собой электроды из меди. В развитии эксперимента использовалась ячейка с изолированным от жидкости нижним электродом (рис. 1, *c*). Электрическое поле пересчитывалось к фактически существующему в канале. Толщина изолирующей прокладки 0.7 mm. Участок капилляра перед ячейкой подбирался такой длины, чтобы по всей длине ячейки течение носило установившийся характер.

Тогда динамическая вязкость

$$\eta = A \frac{\Delta P}{Q}, \quad (1)$$

где A — константа установки; ΔP — перепад давления, обусловливающий расход Q — перепад давления.

При подаче электрического поля

$$\eta_{el} = A \frac{\Delta P}{Q_{el}}. \quad (2)$$

Отсюда изменение вязкости

$$\frac{\eta_{el} - \eta}{\eta} = \frac{t_{el} - t}{t},$$

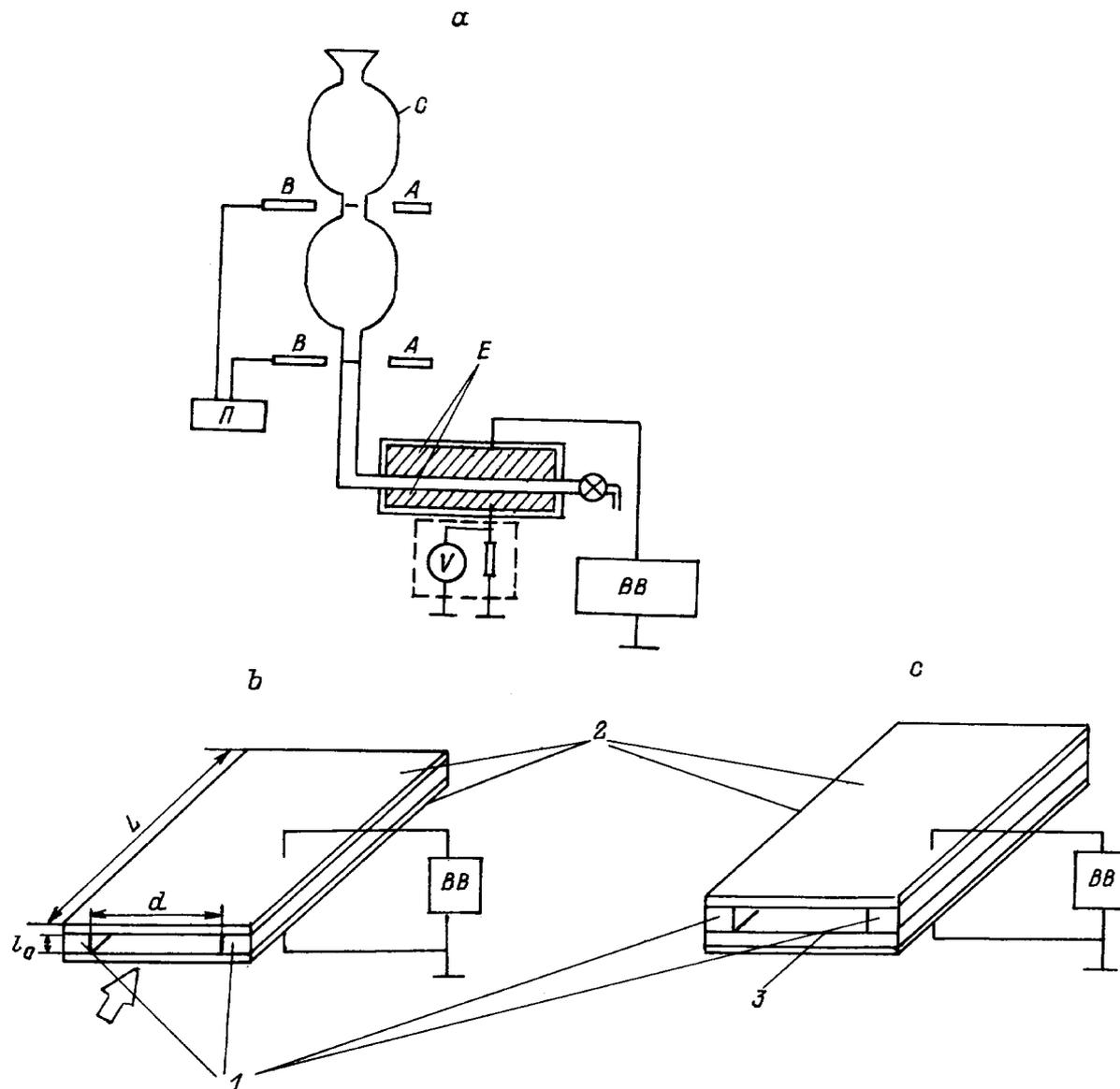


Рис. 1. Схема экспериментальной установки. *a* — общий вид; *b, c* — проточная кювета с неизолированным и изолированным от жидкости электродом; *A* — источник светового сигнала, *B* — регенератор, *C* — сосуд, *E* — электроды; *1* — изолирующие прокладки, *2* — металлические (медь) прокладки, *3* — изолирующая пластина.

где t_{el} — время истечения жидкости при наложении электрического поля E ; t — время истечения жидкости без электрического поля.

Надо отметить, что величина вязкости, полученная без приложения поля, давала величину, отличную от известных в литературе не более чем на 3%. В обоих случаях контролировалось токопрохождение через ячейку с помощью электрометрического усилителя, позволяющего измерять токи до 0.1 нА. Диапазон используемых напряженностей поля 0.8–120 кВ/см при температуре 20°C.

В качестве объектов исследования использовались жидкости, отличные по своим диэлектрическим параме-

трам, например, ацетон-полярная жидкость ($\epsilon = 20.1$, дипольный момент $\mu = 9.47 \cdot 10^{-30}$ К·м) и гексан-неполярная жидкость ($\epsilon = 1.9$, $\mu = 0$) (табл. 1).

Таблица 1.

| Жидкость | $\eta = 10^3, \text{Pa} \cdot \text{s}$ | ϵ | $\mu, \text{K} \cdot \text{m}$ | J, eV | ΔH | \bar{Z} |
|-------------|---|------------|--------------------------------|----------------|------------|-----------|
| Нитробензол | 0.18 | 35 | $10.2 \cdot 10^{-30}$ | 7 | 8.2 | 20.1 |
| Ацетон | 0.32 | 21.2 | $9.47 \cdot 10^{-30}$ | 9.7 | 8.9 | 9.7 |
| Гексан | 0.35 | 1.9 | 0 | 10.5 | 10.2 | 33.5 |
| Толуол | 0.59 | 2.4 | $1.7 \cdot 10^{-30}$ | 9 | 10.8 | 23.5 |
| Хлорбензол | 0.83 | 5.3 | $5.2 \cdot 10^{-30}$ | 9.4 | 12.4 | 19.7 |
| Декан | 0.92 | 1.2 | 0 | 11 | 12.2 | 40.2 |

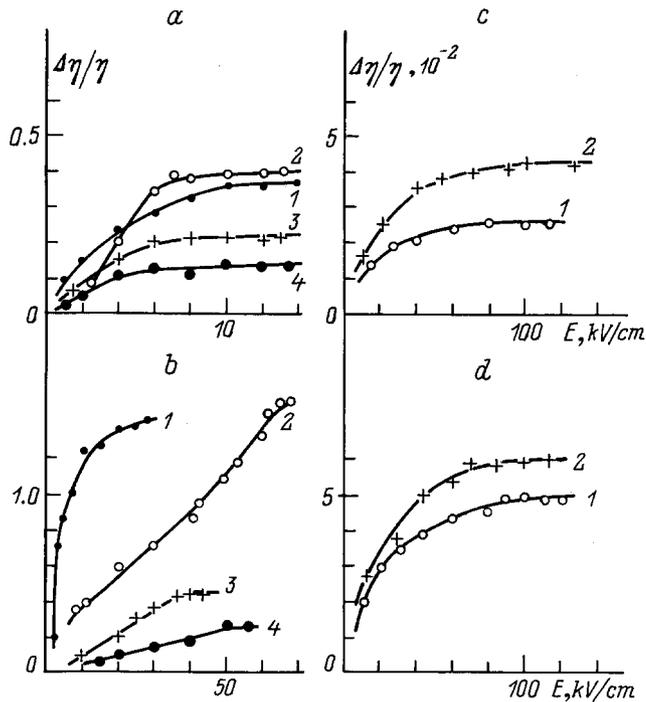


Рис. 2. Относительное изменение вязкости от напряженности поперечного электрического поля в полярных (*a, b*) и неполярных (*c, d*) жидкостях в кюветах с изолированным (*a, c*) и неизолированным от жидкости электродом (*b, d*). *a, b*: 1 — ацетон, 2 — нитробензол, 3 — хлорбензол, 4 — толуол; *c, d*: 1 — гексан, 2 — декан.

Представленные жидкости объединяет то, что они являются диэлектриками и достаточно типичными представителями значительных групп последних. В результате эксперимента были получены зависимости изменения вязкости от приложенного напряжения как для ячейки с одним изолированным электродом, так и для ячейки с неизолированными электродами. По величине изменения вязкости жидкости разделились на две группы: в одной (полярные жидкости) изменение вязкости в обоих сортах ячеек (неизолированными и изолированными электродами) происходило в диапазоне 10–160% при неизолированных электродах и 5–40% при одном изолированном электроде (рис. 2, *a, b*). В другой группе (неполярные жидкости) изменение вязкости не превышало 6% в неизолированных и 4% в системе изолированных электродов (рис. 2, *c, d*). В основном все кривые зависимостей $\eta(E)$ имеют два участка: быстрого роста и малого изменения (насыщения). Кривые зависимостей для ацетона и бензола заметно отличаются от других крутым участком роста. В ячейках с изолированным электродом кривые сходны по виду. В неполярных жидкостях также можно выделить два участка: быстрого роста и медленного изменения. Кривые сходны для ячеек обоих видов. Надо отметить, что величина изменения вязкости при протекании тока через ячейку выше, чем при отсутствии тока (например, для декана при напряженности 60 kV/cm ука-

занные величины разнятся в 1.5 раз, а для хлорбензола при напряженности $E = 10$ kV/cm в 4 раза). Вероятно, при токопрохождении через ячейку при $E > E_{cr}$ рост вязкости обуславливается совместным электроконвективным и молекулярным переносом импульса. В ячейке же с изолированным электродом электроконвекции не возникает. Изменению вязкости (в этом случае) можно предложить качественные объяснения. Известно [9], что

$$\eta = \left(\frac{hN}{V_m} \right) \exp\left(\frac{\Delta Q}{RT} \right) = A \exp\left(\frac{\Delta Q}{RT} \right),$$

где η — динамическая вязкость, T — абсолютная температура, Q — свободная энтальпия, h — постоянная Планка, K — постоянная Больцмана, R — газовая постоянная, N — число Авогадро, V_m — молярный объем.

В данном эксперименте A, T — постоянные. Тогда изменение вязкости в электрическом поле может быть связано лишь с изменением ΔQ : $\eta_{el} = A \exp(\Delta Q_{el}/RT)$. Из эксперимента $\eta_{el} > \eta$ и, следовательно, $\Delta Q_{el} > \Delta Q = \Delta H - T\Delta S$, где ΔS и ΔH — энтальпия и энтропия активации течения. Оценки [10] показали, что изменение свободной энтальпии в электрическом поле связано в основном с изменением ΔH . Величины ΔQ_{el} и ΔH_{el} рассчитывались по формулам [10]

$$\Delta Q_{el} = RT \ln\left(\frac{V_m \eta_{el}}{hN} \right),$$

$$\Delta H_{el} = RT \left[\ln \frac{V_m \eta_{el}}{hN} - \left(\frac{T}{V_m} \right) \frac{\partial V_m}{\partial T} \right].$$

Известно также [9], что $\Delta H > \bar{\varphi}_m$, где $\bar{\varphi}_m$ — молярная плотность энергии межмолекулярного взаимодействия, т.е. при течении должна происходить деформация "надмолекулярной структуры" жидкости и структуры ближайшего окружения, описываемого параметром

$$\bar{Z} = \frac{\Delta H}{N} [10],$$

$$\bar{\varphi}_p \bar{Z}$$

где \bar{Z} — среднее число молекул, для которых наблюдается корреляция взаимодействий при течении жидкости; $\bar{\varphi}_p$ — средняя энергия парного межмолекулярного взаимодействия.

Для оценки энергии взаимодействия молекул исследуемых жидкостей в пределах первой координационной сферы используем вариант потенциала Лондона–Дебая–Кeesома [11]

$$\bar{\varphi}_1 - \bar{Z}_1 \bar{\varphi}_p = \bar{Z}_1 \left[\frac{4}{3} J \alpha^2 + 2\mu^2 \alpha + 2 \frac{\mu^4}{3KT} \right] \frac{1}{\bar{r}_1^6},$$

где J — потенциал ионизации, α — поляризуемость молекулы, μ — дипольный момент молекулы, $\bar{\varphi}_p$ — средняя энергия парного межмолекулярного взаимодействия, \bar{Z}_1 — усредненное по всему объему число молекул, \bar{r}_1 — радиус первой координационной сферы.

Таблица 2.

| Жидкость | Ток через жидкость не течет | | | | Ток через жидкость течет | | | |
|-------------|-----------------------------|-------------------|-------------------------|----------------|--------------------------|-------------------|-------------------------|----------------|
| | E , kV/cm | $\Delta\eta/\eta$ | ΔH_{el} , J/mol | \bar{Z}_{el} | E , kV/cm | $\Delta\eta/\eta$ | ΔH_{el} , J/mol | \bar{Z}_{el} |
| Нитробензол | 10 | 0.40 | 9.0 | 22.0 | 10 | 0.4 | 8.8 | 23.1 |
| Ацетон | 10 | 0.35 | 10.0 | 11.5 | 10 | 1.26 | 10.9 | 11.8 |
| Гексан | 60 | 0.025 | 10.0 | 33.1 | 60 | 0.05 | 10.6 | 34.5 |
| Толуол | 10 | 0.10 | 12.0 | 24.8 | 30 | 0.15 | 12.1 | 25.1 |
| Хлорбензол | 10 | 0.20 | 13.2 | 21.5 | 20 | 0.20 | 12.9 | 20.6 |
| Декан | 60 | 0.04 | 12.9 | 41.5 | 60 | 0.045 | 13.3 | 42.3 |

Наложение электрического поля должно приводить к возрастанию дипольного момента жидкости

$$\mu_{el} = \mu + \left[\alpha + \frac{\mu^2}{3KT} \right] E$$

и соответственно $\bar{\varphi}_p$, но оценки показали, что при использованных параметрах изменение жидкости малю (не превышало 1%) и им можно пренебречь. Остается предположить, что возрастание вязкости в электрическом поле связано в основном с усилением корреляции молекул ближайшего окружения. Тогда по аналогии можно записать

$$\Delta H_{el} = \bar{Z}_{el} \bar{\varphi}_p \frac{N}{2},$$

где \bar{Z}_{el} — среднее число молекул, для которых наблюдается корреляция при течении жидкости в электрическом поле.

Из эксперимента получили (табл. 2), что $\bar{Z}_{el} > \bar{Z}$ как при наличии тока через ячейку, так и в отсутствии токопрохождения. Причем при прохождении тока \bar{Z}_{el} больше, чем при его отсутствии.

Таким образом, исследования показали, что при наложении электрического поля поперек потока жидкого диэлектрика происходит изменение вязкости как в полярных, так и в неполярных жидкостях. Причем эффект реализуется как при протекании тока через жидкость, так и без него. При наличии тока эффект сильнее. В этом случае можно предположить, что передача импульса осуществляется совместным конвективным и молекулярным переносом. Основное изменение вязкости происходит за счет увеличения числа молекул, для которых наблюдается корреляция, т.е. за счет образования новых структур в жидкости. Наличие инжектирующего электрода позволяет предположить, что центрами структурообразования могут быть ионы, т.е. возникают ионномолекулярные комплексы.

Список литературы

- [1] *Andrade E.N., Dodd C.* // Proc. Royal Soc. Ser. A. N 1010. 1946. Vol. 187. P. 296–336.
- [2] *Соколов П.Т., Сосинский С.Л.* // ДАН СССР. 1937. Т. 4. № 127. С. 1037–1042.
- [3] *Dikarev B.N., Ostapenko A.A., Karasev G.G.* // XI Intern. Conf. on conduction and Breakdown in dielectrics liquids. Zurich, 1993 (IEEE). P. 509–514.
- [4] *Ричков Ю.М., Лиона В.А.* и др. // Электронная обработка материалов. 1994. № 5. С. 34–37.
- [5] *Honda J., Sasada T.* // Jap. J. Appl. Phys. 1977. Vol. 16. № 10. P. 1775–1783.
- [6] *Болога М.К., Гроссу Ф.П., Кожухарь И.А.* Электроконвекция и теплообмен. Кишинев: Штиинца, 1977. 320 с.
- [7] Электрореологический эффект / Под ред. А.В. Лыкова. Минск: Наука и техника, 1972. 176 с.
- [8] *Шишков Ю.К., Остапенко А.А.* Электродинамические течения жидких диэлектриков. Л.: Изд-во ЛГУ, 1989. 175 с.
- [9] *Глестон С., Лейдер К., Эйринг Г.* Теория абсолютных реакций. М.: ГИИТЛ, 1948. 583 с.
- [10] *Шахпаронов М.И.* Методы исследования теплового движения молекул и строение жидкостей. М., 1963. 296 с.
- [11] *Луцкий А.Е.* // ЖФХ. 1978. Т. 52. № 4. С. 955–960.