

УДК 535.36; 535.434; 544.77

ИЗМЕНЕНИЕ ХАОТИЧЕСКОГО ДВИЖЕНИЯ ВЗВЕШЕННЫХ В ЖИДКОСТИ ЧАСТИЦ КРЕМНИЯ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ПОЛЯ

О. С. Греггер^{1,2}, С. В. Кривохижа¹, Е. С. Лаптева^{1,3}, Л. Л. Чайков¹

Экспериментально показано уменьшение характерного времени корреляции света, рассеянного частицами кремния в трансформаторном масле, и увеличение эффективного коэффициента их диффузии при наложении на взвесь частиц в масле постоянного электрического поля. При этом ток во взвеси не превышает 100 нА и её температура не меняется. Показано также изменение формы корреляционной функции рассеянного частицами света: в ней появляется гауссов сомножитель. Приведены зависимости экспоненциальной и гауссовой составляющей от напряжения на электродах.

Ключевые слова: суспензия частиц в поле, электрофорез, коэффициент диффузии, динамическое рассеяние света.

Поведение частиц суспензий и эмульсий в электрическом поле довольно широко изучалось с точки зрения исследования скорости поступательного электрофоретического движения частиц, дающей информацию об их ζ -потенциале и других электрокинетических свойствах [1, 2]. Изучалась электрофоретическая скорость как в линейном [1], так и в нелинейном [2, 3] по полю режиме. Настоящая работа посвящена изучению не поступательного, а хаотического, броуновского и квазиброуновского движения частиц кремния, взвешенных в трансформаторном масле, в сильном электрическом поле. Радиус частиц в разных сериях измерений составлял 140–230 нм, концентрация – $(1.5 - 0.5) \cdot 10^8 \text{ см}^{-3}$.

¹ Учреждение Российской академии наук Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Ленинский проспект, д. 53; e-mail: chaik@sci.lebedev.ru, skrivokh@sci.lebedev.ru, elionelle@gmail.com, greger-olga@yandex.ru.

² Московский физико-технический институт (Государственный университет), 141700 Московская обл., г. Долгопрудный, Институтский пер., 9.

³ НИЯУ «МИФИ», 115409 Москва, Каширское ш., 31.

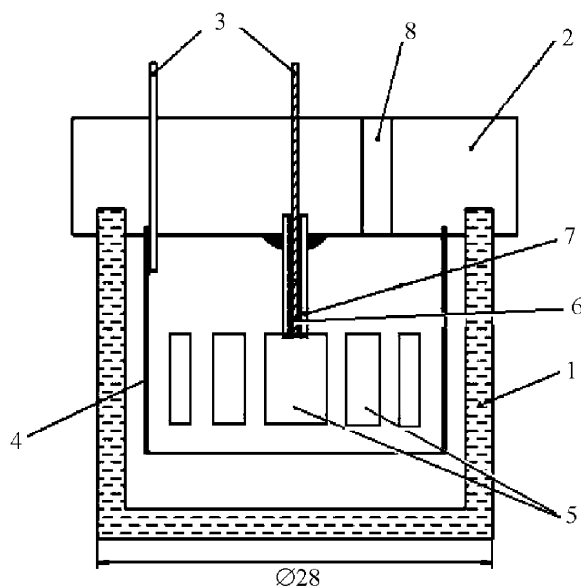


Рис. 1: Цилиндрическая кювета с коаксиальными электродами: 1 – кварцевый стакан, 2 – пробка, 3 – контакты, 4 – латунный цилиндр, 5 – отверстия для возбуждающего луча и наблюдения, 6 – центральный электрод, 7 – тefлоновая трубка, 8 – отверстие для термомпары или щупа.

При исследовании воздействия постоянного электрического поля на такую суспензию были обнаружены интересные эффекты: ускорение хаотического движения частиц, т.е. увеличение эффективного коэффициента диффузии, и изменение вида корреляционной функции интенсивности рассеянного суспензией света. Важно отметить, что при этом в суспензии наблюдалось постоянство температуры в пределах нескольких сотых градуса, а ток не превышал 100 нА.

Измерения проводились методом динамического рассеяния света, с помощью корреляционной спектроскопии самобийений. Использовалась традиционная для данного метода схема установки [4]. Измерялась функция корреляции интенсивности рассеянного света

$$g^{(2)}(\tau) = \langle I(0)I(\tau) \rangle = 1 + A|g^{(1)}(\tau)|^2; \quad g^{(1)}(\tau) = \langle E(0)E^*(\tau) \rangle, \quad (1)$$

которая в случае броуновского движения монодисперсных невзаимодействующих частиц имеет форму экспоненты с обратной полушириной

$$1/\tau = \Gamma = Dq^2 = \frac{kTq^2}{6\pi\eta r_p}, \quad (2)$$

равной обратному времени релаксации фурье-составляющей флуктуаций концентрации частиц с волновым вектором q , $\mathbf{q} = \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_0$. Здесь T – температура, k – постоянная Больцмана, η – вязкость жидкости, r_p – радиус частиц, \mathbf{k}_s , \mathbf{k}_0 – волновые вектора рассеянного и возбуждающего света.

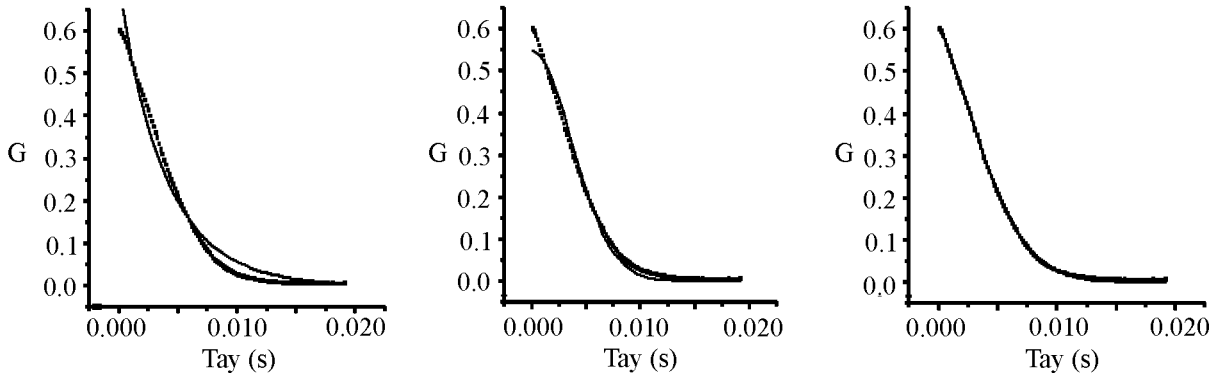


Рис. 2: Аппроксимация корреляционной функции интенсивности света, рассеянного частицами, экспонентой (слева), гауссианом (в середине) и их произведением (справа). Напряжение на электродах 1200 В.

Отметим, что при направленном движении частиц, однородном по скорости в объёме рассеяния, автокорреляционная функция интенсивности рассеянного света оказывается нечувствительна к общему однородному движению частиц, и характеризует лишь их хаотическое, квазиброуновское движение [5].

Экспериментальные измерения проводились в цилиндрической кювете с коаксиальными электродами, заполненной суспензией частиц кремния в трансформаторном масле. Ее схематическое изображение представлено на рис. 1.

Кювета устанавливалась на столик гониометра, соосно с ним, и юстировалась так, чтобы луч лазера, сфокусированный линзой с $f = 300$ мм, пересекал их общую ось под прямым углом. На алидаду гониометра помещался ФЭУ, который мог устанавливаться под различными углами для регистрации света, рассеянного в точке пересечения луча и оси кюветы. Объем рассеяния определялся диаметром луча (0.3 мм) и диаметром поля зрения ФЭУ (0.185 мм). В кювету, соосно с ней, были введены вертикальные коаксиальные электроды диаметром 20 и 0.8 мм. По окружности внешнего электрода имелись отверстия, через которые проходили возбуждающий луч и рассеянный свет. Лазерный луч пересекал ось кюветы на 2 мм ниже конца внутреннего электрода. Боковая поверхность внутреннего электрода была изолирована. Ток в суспензии не превышал 100 нА.

Т а б л и ц а 1

Зависимость параметров W (сек) и g (сек⁻¹) от напряжения.

$$r_p = 149 \pm 5 \text{ мм}$$

Напряжение V	$\ln(V)$	Параметр W	Параметр g	$\ln(1/W)$	$\ln(g)$
800	6.68461	0.02019	36.20413	3.90257	3.58917
1000	6.90776	0.0481	69.39828	3.03447	4.23986
1200	7.09008	0.00472	99.79587	5.35595	4.60313
1400	7.24423	0.00387	92.41763	5.5545	4.52632
1600	7.37776	0.00308	243.93825	5.78283	5.49692
1800	7.49554	0.00169	249.06315	6.38303	5.51771
2000	7.6009	0.00117	251.32971	6.75075	5.52677
2200	7.69621	0.00117	251.36367	6.75075	5.5269
2400	7.78322	6.8E-4	447.89705	7.29342	6.10456
2600	7.86327	6.8E-4	428.74828	7.29342	6.06087
2800	7.93737	5.8E-4	470.17061	7.45248	6.1531
3000	8.00637	4.4E-4	763.43221	7.72874	6.63782
3200	8.07091	3.2E-4	950.06505	8.04719	6.85653

Чтобы определить размеры частиц взвеси, были измерены корреляционные функции в отсутствие напряжения. Радиус частиц составлял от 140 до 230 нм в разных сериях измерений. Частицы достаточно монодисперсны, и эти корреляционные функции представляли собой “хорошие” экспоненты.

При приложении к электродам кюветы напряжения в 600 В резко падает характерное время корреляции, т.е. растет эффективный коэффициент диффузии. При изменении напряжения от 600 до 1200 В характерное время корреляции уменьшилось с 60 до 13 мкс. Кроме того, уже при напряжении 600 В корреляционная функция несколько изменяется и плохо описывается экспоненциальной зависимостью. При дальнейшем увеличении напряжения корреляционная функция значительно меняет свой вид и становится всё более похожей на гауссову кривую.

Для анализа полученных данных была проведена аппроксимация корреляционной функции, снятой при напряжении 1200 В, экспонентой, гауссианом и их произведением. Результаты аппроксимации представлены на рис. 2. Видно, что в последнем случае ошибка минимальна. Исходя из этого, мы сочли целесообразным использовать функцию (3) для аппроксимации полученных при разных напряжениях корреляционных

функций

$$G(\tau) = B + A \cdot \exp\left(-g\tau - \frac{\tau^2}{2W^2}\right). \quad (3)$$

Изначально предполагалось, что появление в функции корреляции гауссова множителя может быть обусловлено квазитурбулентным движением жидкости, но эта гипотеза была опровергнута экспериментами с чистым маслом. При использовании чистого масла движение жидкости отсутствовало.

Было проведено исследование зависимости функции корреляции от напряжения. Измерения производились в диапазоне от 800 до 3200 В с шагом в 200 В при угле рассеяния 46° . Функции корреляции, полученные при каждом из напряжений, аппроксимировались функцией (3). Варьировались параметры (B, A, W, g) . Последние два параметра определяют ширину спектральной линии и характеризуют интересующие нас эффекты. Результаты подгонки представлены в табл. 1 и на рис. 3.

На рис. 3 зависимости параметров w и g от напряжения представлены в двойном логарифмическом масштабе. Видно, что эти зависимости являются степенными или близки к ним.

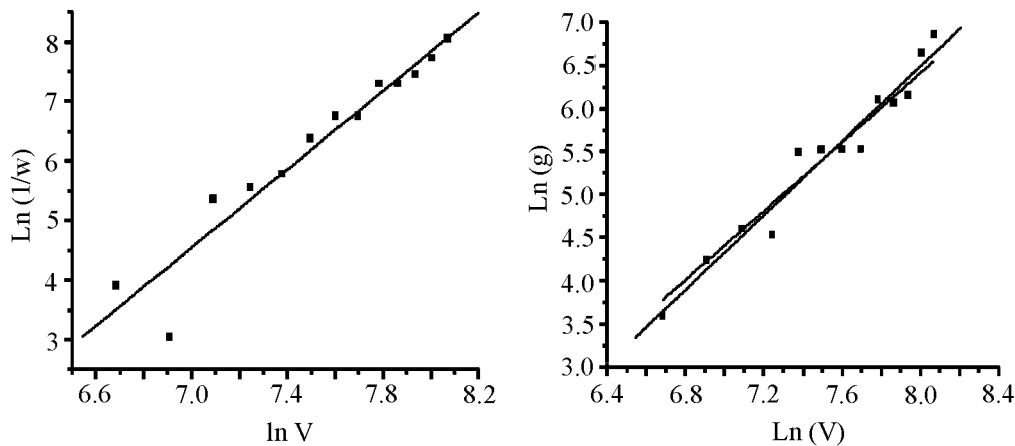


Рис. 3: Зависимость параметров функции корреляции $1/w$ и g от напряжения на электродах в кВ. На правом рис. – прямая с большим наклоном – подгонка к $y = A+Bx$, с меньшим наклоном – $B \equiv 2$.

Из угловых зависимостей параметров W и g (рис. 4) видно, что

$$W \approx \frac{1}{q} \text{ и } g \sim q^2. \quad (4)$$

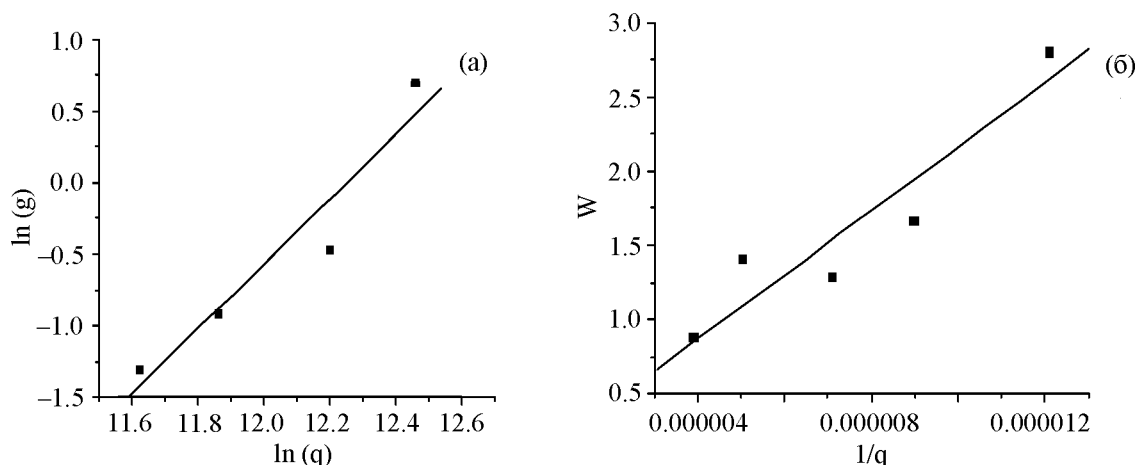


Рис. 4: Угловые зависимости параметров g и W : (а) $\ln(g)$ от $\ln(q)$; (б) $W(1/q)$.

Итак, в результате проведенных экспериментов были обнаружены два эффекта: 1) уменьшение характерного времени корреляции и увеличение эффективного коэффициента диффузии в электрическом поле с градиентом напряжённости и 2) изменение формы функции корреляции рассеянного света в таком поле. Функция приобретает гауссов сомножитель.

Предварительные эксперименты с кюветой с плоскими электродами показали, что параметром, определяющим эти эффекты, является напряжённость поля, а не его градиент.

Ускорение движения частиц в жидкости при наложении поля может быть обусловлено их взаимодействием. Такое взаимодействие может возникать за счёт поляризации частиц в поле и появления у них дипольного момента или же за счёт гидродинамического взаимодействия потоков масла вокруг движущихся частиц. В результате в уравнении диффузии, описывающем релаксацию флуктуаций концентрации частиц, возникают дополнительные члены, и эффективный коэффициент диффузии изменяется. Заметим, однако, что при взаимодействии частиц, вызванном наличием у них зарядов или столкновениями частиц с конечными радиусами, коэффициент диффузии уменьшается, а не увеличивается [6–9]. Но описание взаимодействия частиц выходит за пределы данной статьи и будет рассмотрено отдельно.

Появление гауссова сомножителя в функции корреляции может быть обусловлено как изменением протекания процесса релаксации флуктуаций концентрации частиц, так и, например, потоком суспензии через объём рассеяния типа конвекционного потока

(пересечение луча движущимися параллельно частицами). Выяснение этого вопроса требует дополнительных измерений и также будет рассмотрено отдельно.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] С. С. Духин, Б. В. Дерягин, *Электрофорез* (М., Наука, 1976).
- [2] V. Shilov, S. Varany, C. Grosse, O. Shramko, *Adv. In Coll & Interf. Sci.* **104**, 159 (2003).
- [3] S. Varany, F. Madai, V. Shilov, *Progr. Colloid Polym. Sci.* **128**, 14 (2004).
- [4] К. В. Коваленко, С.В. Кривохижа, А. В. Масалов, Л. Л. Чайков, *Краткие сообщения по физике ФИАН*, **36**(4), 3 (2009).
- [5] T. Palberg, H. Reiber, T. Köller, et al., *ArXiv.org>cond-mat>arXiv:0811.2321* (2008).
- [6] Tung Tsang and T. Tang, *J. Chem. Phys.* **76**(8), 3873 (1982).
- [7] Hui Xia, Katsuhiko Ishii, Tohiaki Iwai, Hongian Li, and Bingchu Yang, *Applied optics* **47**, № 9, 1257 (2008).
- [8] Robert Finsky, Annie Devriese, Hendric Lekkerkerker, *J.C.S. Faraday II*, **76**, 767 (1980).
- [9] A. M. Cazabat, D. Langevin. *J. Chem. Phys.* **74**(6), 3148 (1981).

По материалам 3 Всероссийской молодежной школы-семинара “Инновационные аспекты фундаментальных исследований по актуальным проблемам физики”, Москва, ФИАН, октябрь 2009 г.

Поступила в редакцию 9 июля 2010 г.