

УДК 537.9

СТРУКТУРНЫЕ ПРЕВРАЩЕНИЯ В МАГНИТНЫХ ЭМУЛЬСИЯХ ПРИ ИХ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ С ПЕРЕМЕННЫМ ЭЛЕКТРИЧЕСКИМ ПОЛЕМ

© 2021 г. Е. С. Бекетова¹, *, О. А. Нечаева¹, В. Д. Мкртчян¹,
А. Р. Закинян¹, Ю. И. Диканский¹

¹Северо-Кавказский федеральный университет,
ул. Пушкина, 1, Ставрополь, 355017 Россия

*e-mail: tkacheva_es.86@mail.ru

Поступила в редакцию 31.08.2020 г.

После доработки 12.10.2020 г.

Принята к публикации 23.10.2020 г.

Исследованы особенности взаимодействия с переменным электрическим полем магнитных эмульсий, представляющих собой систему микрокапель магнитных жидкостей на углеводородной основе, взвешенных в несмешивающейся с ними масляной среде. Показана возможность формирования в таких средах в переменном электрическом поле различных структурных решеток, изменять тип которых можно путем варьирования частоты поля и температуры, а также дополнительного воздействия постоянным магнитным полем. Анализ полученных результатов проведен с учетом движения жидких фаз, обусловленного накоплением свободного заряда на межфазных границах.

DOI: 10.31857/S0023291221020038

ВВЕДЕНИЕ

Исследованию особенностей взаимодействия микрокапель магнитных жидкостей с магнитным и электрическим полями посвящено достаточно большое количество работ (см., например, [1–11]), в которых рассматривались особенности как деформации, так и развития неустойчивости их формы. Как правило, такие исследования проводятся при использовании тонких слоев магнитных коллоидов, содержащих микрокапельные агрегаты. При этом если первоначально эксперименты проводились в магнитных полях [1–3, 9], то в дальнейшем изучение особенностей деформации микрокапель проводилось и в электрических полях, а также при совместном воздействии электрического и магнитного полей [4–8, 11]. В [4, 6] было установлено, что в переменных электрических полях капли могут как сплющиваться, так и удлиняться вдоль направления поля, тогда как капли, находящиеся в магнитном поле, всегда удлиняются вдоль его направления. Такое отличие поведения микрокапель в электрическом поле связано с развитием в электрическом поле движения жидких фаз вдоль границ микрокапель, обусловленного накоплением свободного заряда на межфазных границах. Ранее такой механизм деформации капель гомогенной жидкости в постоянном электрическом поле был рассмотрен в работе [12]. Согласно ее результатам,

характер деформации капель (сплющивание или удлинение вдоль поля) определяется соотношением проводимостей и диэлектрических проницаемостей вещества капли и окружающей ее среды. При объяснении особенностей деформации капель в переменном поле на основе этого механизма необходимо также учесть релаксационных эффектов, что было предпринято в [4].

В [5, 6] исследовано влияние переменных электрических полей на характер структуры магнитных жидкостей с хорошо развитой системой микрокапельных агрегатов. В таких средах возможно формирование структурных решеток лабиринтного или гексагонального типа в зависимости от частоты поля. Очевидно, что тип наблюдаемых структурных решеток во многом связан с соотношением времен релаксации различных процессов, характерных для таких систем, помещенных в переменное электрическое поле: максвелловского времени релаксации заряда, времени релаксации анизотропии формы капель, времени их поворота в поле и времени развития электрогидродинамических течений. Однако механизмы формирования таких структурных решеток остаются еще недостаточно ясными, что является одной из причин отсутствия теоретического описания этих явлений.

Следует заметить, что использование в качестве объектов такого исследования системы мик-

рокапельных агрегатов приводит к затруднениям при анализе результатов из-за сложности определения электрических и магнитных параметров агрегатов, которые к тому же могут отличаться для различных образцов используемых магнитных жидкостей с микрокапельной структурой.

В настоящей работе исследовались микрокапли магнитных эмульсий, полученных диспергированием однородной магнитной жидкости в масляной среде [13]. В отличие от магнитных эмульсий на водной основе их можно отнести к слабо проводящим средам, их микрокапли отличаются от микрокапель эмульсий на основе воды малым межфазным натяжением на границе капли—среда, что делает возможным их деформацию (как и исследовавшихся ранее микрокапельных агрегатов магнитных жидкостей) даже в небольших магнитном и электрическом полях. В таких эмульсиях возможны структурные превращения, аналогичные наблюдавшимся ранее в магнитных жидкостях с микрокапельными агрегатами. При этом физические параметры эмульсий определяются параметрами диспергируемой магнитной жидкости и дисперсионной среды, измерение которых не представляет большой сложности. При проведении экспериментальных исследований структурных превращений в таких средах в переменном электрическом поле кроме частоты и напряженности поля варьировалась также температура. Также исследовалось влияние на формирование структурных решеток дополнительного воздействия постоянным магнитным полем.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА И ОБРАЗЦЫ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ

В качестве объектов исследования использовались два образца магнитной эмульсии, представляющие собой взвесь микрокапель магнитной жидкости в масляной среде. Образец № 1 был получен путем добавления в масло АМГ-10 однородной магнитной жидкости с магнетитовыми частицами, дисперсионной средой в которой являлось масло ЛЗ-МГ-2, при этом соотношение объемов АМГ-10 и исходного образца магнитной жидкости составляло 9 : 1. Смесь перемешивали с помощью электромеханической мешалки, в результате чего получали магнитную эмульсию, содержащую микрокапли магнитной жидкости диаметром 10–16 мкм. Аналогичным образом приготавливали образец № 2, отличием являлось использование в качестве диспергируемой среды магнитной жидкости на основе керосина с магнетитовыми частицами.

Измерения диэлектрической проницаемости ϵ и проводимости γ компонентов эмульсий проводили мостовым методом. Для определения диэлектрической проницаемости исследуемый образец помещали в ячейку с медными электрода-

ми, представляющую собой конденсатор в форме прямоугольного параллелепипеда, имеющего размеры $30 \times 40 \times 2.5$ мм. Далее измеряли емкость ячейки по параллельной схеме замещения. Для измерений применяли цифровой мост переменного тока GW Instek LCR-78110G с частотой измерительного сигнала 1 кГц. Искомая величина диэлектрической проницаемости ϵ определялась из выражения

$$\epsilon = \frac{C - C_p}{C_0 - C_p},$$

где C_0, C – емкости пустой ячейки и ячейки, заполненной образцом, C_p – паразитная емкость ячейки, создаваемая соединительными проводами, диэлектрическими прокладками и краевым эффектом. Паразитную емкость определяли при помощи эталонной жидкости согласно соотношению $C_p = (\epsilon_s C_0 - C) / (\epsilon_s - 1)$, где ϵ_s – диэлектрическая проницаемость эталонной жидкости, в качестве которой использовали ундекан $\epsilon_s = 2$.

Электропроводность измеряли аналогичным образом. По измеренной величине активной проводимости G ячейки с образцом определяли удельную электропроводность: $\gamma = G\epsilon_0 / (C_0 - C_p)$.

Для определения величины межфазного натяжения на границе микрокапля—среда были проведены измерения зависимости деформации капли магнитной жидкости в масле АМГ от величины напряженности однородного стационарного магнитного поля. Полученные экспериментальные данные затем аппроксимировали аналитической зависимостью [14]:

$$H^2 = \frac{2\sigma}{\mu_0 R} \left(\frac{1}{\mu - 1} + N \right)^2 \times \frac{(3 - 2e^2)/e^2 - (3 - 4e^2) \arcsin e / (e^3(1 - e^2)^{1/2})}{(1 - e^2)^{2/3} \left[(3 - e^2) \ln((1 + e)/(1 - e)) / e^5 - 6/e^4 \right]},$$

где N – деполяризующий фактор деформированной капли,

$$N = \frac{1 - e^2}{2e^3} \left(\ln \frac{1 + e}{1 - e} - 2e \right), \quad e = \sqrt{1 - \frac{b^2}{a^2}},$$

μ – магнитная проницаемость магнитной жидкости, R – радиус капли. Величина σ выступает в качестве параметра аппроксимации.

В табл. 1 представлены физические параметры магнитных жидкостей, использованных для приготовления образцов, а также дисперсионных сред эмульсий.

Структурные превращения в системе микрокапель эмульсий в электрическом поле изучали с помощью оптического микроскопа типа Биолам, не содержащего намагничивающихся деталей.

Микроскоп был снабжен видеокамерой, сопряженной с компьютером. Для исследования структуры эмульсий использовали кювету, представляющую собой две прозрачные прямоугольные стеклянные пластины с токопроводящим покрытием (рис. 1). Между проводящими поверхностями стекол помещалась фторопластовая пленка с круглым отверстием посредине, которое заполнялось магнитной эмульсией. Толщина слоя жидкости составляла 50–70 мкм и регулировалась подбором пленок полимера разной толщины. Для создания между пластинами переменного электрического поля на них подавали напряжение от генератора, эффективное значение напряженности поля оценивалось по значению напряжения U и расстоянию между проводящими поверхностями стекол d ($E_{эф} = \frac{U}{d}$). Кювету с исследуемой жидкостью прижимали с помощью механического зажима к термостатирующей системе 7, которая представляла собой массивный медный параллелепипед, через пазы в толще которого прокачивалась вода с заданной температурой.

Температуру контролировали с помощью медь-константановой термопары, расположенной под прижатой к термостатирующей системе стенкой кюветы с эмульсией. Для осуществления дополнительного воздействия магнитным полем, ячейка была снабжена намагничивающей системой (катушками Гельмгольца), создающей однородное поле в объеме, в несколько раз превышающем габариты кюветы.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Первоначально был исследован образец № 1 магнитной эмульсии, в котором (как и в образце № 2) микрокапли сохраняли сферическую форму в отсутствие внешних воздействий (рис. 2а). Установлено, что воздействие переменного электрического поля приводит к структурным изменениям эмульсии, характер которых существенно зависит от амплитуды и частоты поля, а также температуры. Так, при постоянной температуре воздействие низкочастотного поля (20–30 Гц) при малых значениях напряжения на ячейке (до 40 В) приводит к деформации капель (сплющиванию вдоль направления поля), исследование особенностей которой проводилось нами ранее [4, 6, 7].

При повышении напряженности поля происходит развитие электрогидродинамических течений и разрушение микрокапельной структуры (рис. 2б). Специально проведенные наблюдения за процессом разрушения капель в подобных условиях показали, что при увеличении напряженности поля устойчивое положение капель нарушается: первоначально они переходят в коле-

Таблица 1. Физические параметры магнитных эмульсий

Дисперсная фаза образца № 1	
Плотность, кг/м ³	1326
Проводимость, См/м	3.3×10^{-6}
Диэлектрическая проницаемость	5.2
Динамическая вязкость, мПа с	10.9
Межфазное натяжение на границе капля/среда, Н/м	3.05×10^{-7}
Дисперсная фаза образца № 2	
Плотность, кг/м ³	1293
Проводимость, См/м	1.7×10^{-6}
Диэлектрическая проницаемость	4.6
Динамическая вязкость, мПа с	3.9
Межфазное натяжение на границе капля/среда, Н/м	2.1×10^{-7}
Дисперсионная среда образцов (масло АМГ-10)	
Плотность, кг/м ³	776
Проводимость, См/м	10^{-14}
Диэлектрическая проницаемость	2.2
Динамическая вязкость, мПа с	14.5

бательное движение и одновременно начинают испускать струйки, состоящие из более мелких капелек. В дальнейшем наблюдается развитие электрогидродинамических течений и окончательное разрушение исходных капель. Из-за малого размера образовавшихся капелек и их непрерывного перемешивания электрогидродинамическими течениями они становятся малоразличимыми. Однако последующее повышение частоты поля приводит к уменьшению интенсивности течений и, при некотором пороговом значении частоты (около 1.5 кГц), формированию лабиринтной структурной сетки (рис. 2в). При продолжении увеличения частоты происходило утоньшение ее фрагментов с последующими разрывами и, при некотором значении частоты (около 2 кГц), трансформация в систему микрокапель, равномерно распределенных в плоскости слоя эмульсии (рис. 2г).

Аналогичные результаты были получены также для образца № 2 магнитной эмульсии. В качестве примера на рис. 3 приведены фотографии лабиринтной и микрокапельной структур, полученных при использовании этого образца.

Следует отметить, что формирование структурных решеток для обоих образцов магнитной эмульсии наблюдается в одном и том же частотном диапазоне электрического поля, однако пороговые значения их возникновения несколько различаются. Так, пороговые значения для лаби-

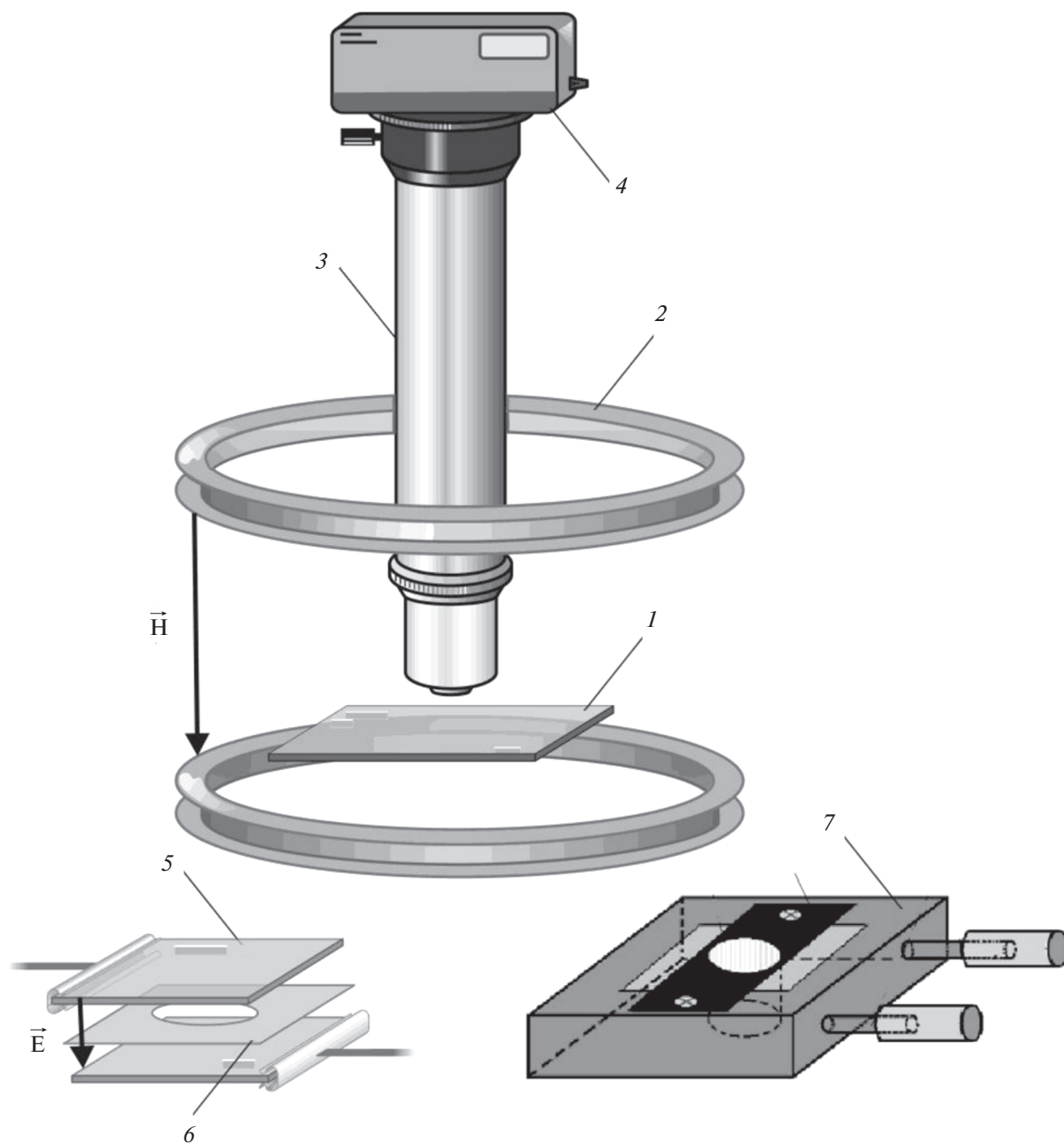


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 – предметный стол, 2 – катушки Гельмгольца, 3 – оптический микроскоп, 4 – видеокамера, 5 – прозрачное токопроводящее покрытие, 6 – фторопластовая пленка, 7 – термостатирующая система.

ринтной и микрокапельной структур в случае образца № 1 составляют 1.5 и 2 кГц соответственно, а для образца № 2 – 0.4 и 0.9 кГц. Кроме того, различаются и размерные параметры решеток, образующихся в разных образцах.

Выяснено, что пороговые частоты образования как лабиринтной, так и микрокапельной структурных решеток в переменном электрическом поле существенно зависят от температуры. Так, при повышении температуры образца поро-

говая частота образования лабиринтной структуры увеличивается, как и частота, при которой эта структура трансформируется в систему отдельных микрокапель. На рис. 4 приведены температурные зависимости частоты, соответствующей возникновению лабиринтной структуры (кривая 1) и ее переходу в систему микрокапель (кривая 2).

Таким образом, оказывается возможным регулировать структурное состояние исследованной магнитной жидкости, находящейся в переменном

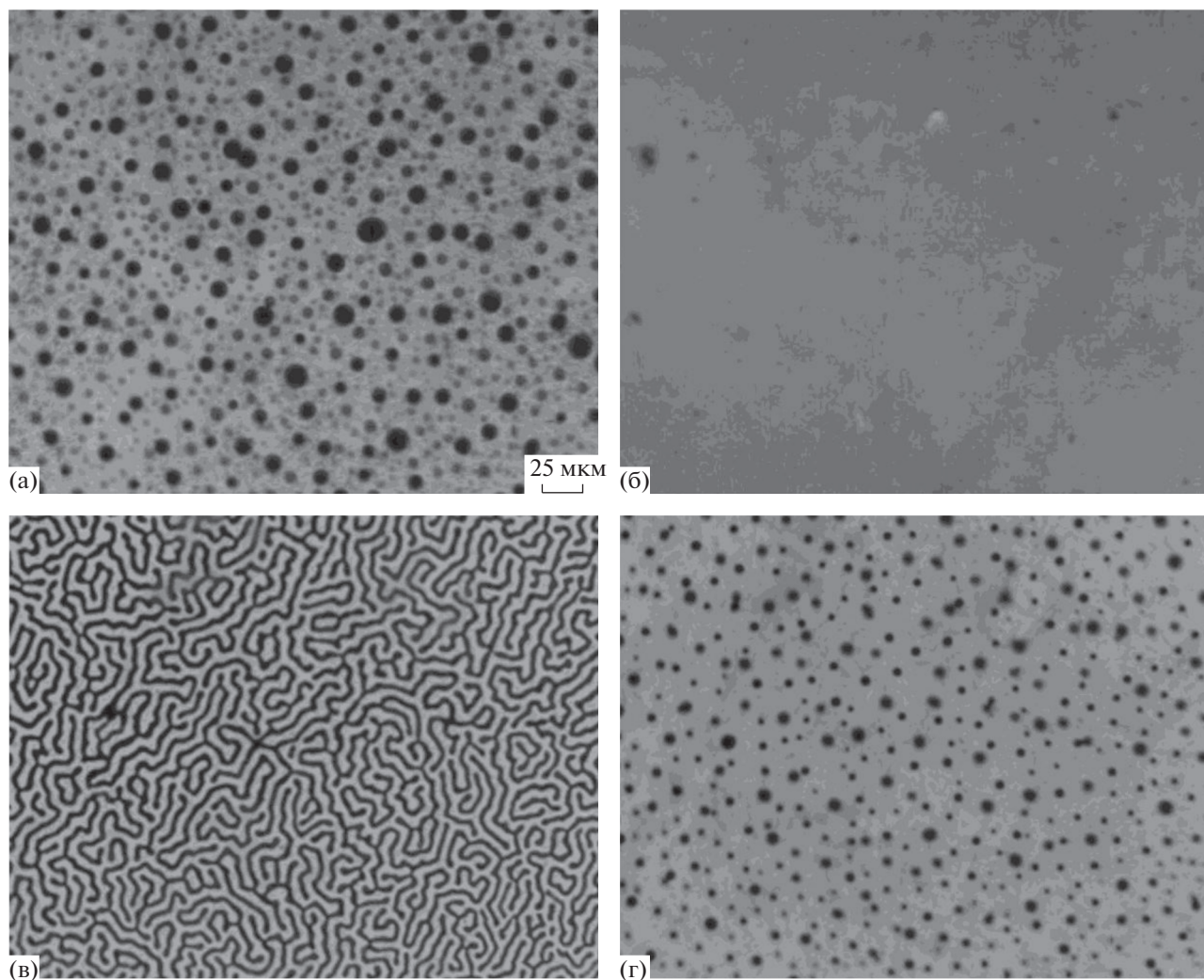


Рис. 2. Последовательная трансформация структуры образца № 1 в переменном электрическом поле. (а) Первоначальный вид эмульсии в отсутствие внешних воздействий; (б) $E = 300$ кВ/м, $f = 500$ Гц; (в) $E = 300$ кВ/м, $f = 1.5$ кГц; (г) $E = 300$ кВ/м, $f = 2$ кГц.

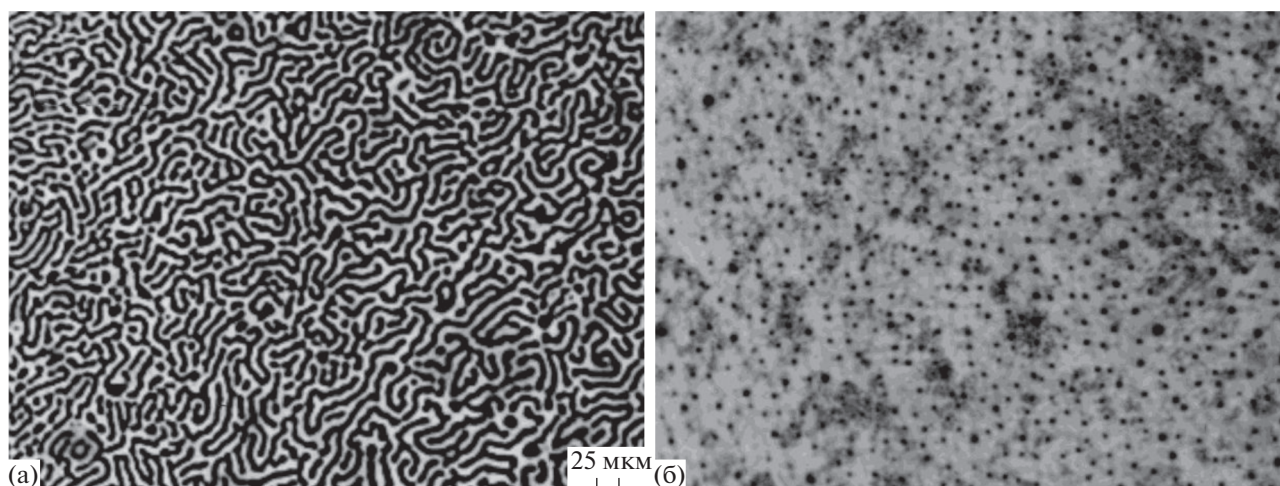


Рис. 3. Структурные решетки, полученные при использовании образца № 2. (а) $E = 300$ кВ/м, $f = 400$ Гц; (б) $E = 300$ кВ/м, $f = 900$ Гц.

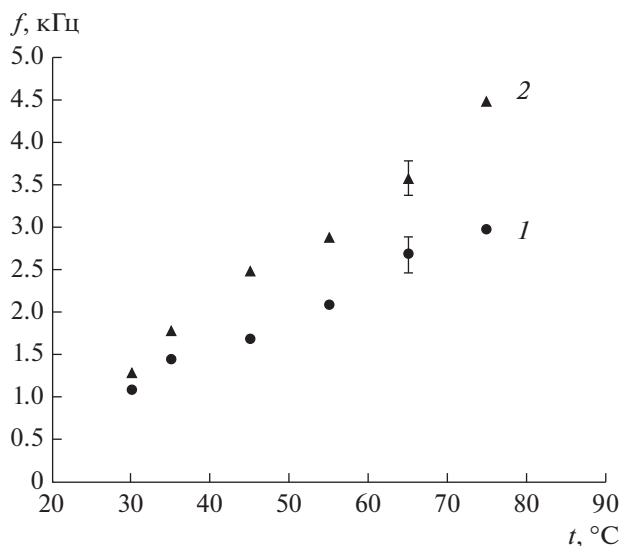


Рис. 4. Температурные зависимости пороговой частоты возникновения лабиринтной структуры, а также ее трансформации в систему отдельных капель в образце № 1 (кривые 1 и 2 соответственно).

электрическом поле фиксированной частоты, путем варьирования температуры. Так, нагревание образца со сформировавшейся под воздействием электрического поля относительно высокой частоты структурой в виде системы отдельных капель приводит при достижении некоторого критического значения температуры к ее переходу в лабиринтную и полному разрушению при дальнейшем повышении температуры (рис. 5, образец № 1). Последующее охлаждение позволяет воспроизвести процесс в обратном направлении — при некотором значении температуры возникает лабиринтная структура, преобразующаяся в систему капель при понижении температуры до первоначального значения.

Аналогичным образом при изменении температуры происходит трансформация структуры, образующейся во втором образце. В подтверждение этого на рис. 6 продемонстрирован переход структурной решетки, образовавшейся в этом образце № 2 при воздействии переменного поля частотой 2 кГц, в лабиринтную при повышении температуры от 30 (а) до 40°C (б).

Была также установлена температурная зависимость критических частот возникновения наблюдаемых структурных решеток от концентрации микрокапель в эмульсии. Оказалось, что увеличение концентрации капель приводит к образованию обеих структур при более высоких частотах. В качестве примера на рис. 7 представлена зависимость пороговой частоты возникновения лабиринтной структуры от температуры при разных значениях объемной концентрации эмульсии (образец № 1).

Далее была исследована температурная зависимость пороговой частоты возникновения лабиринтной структуры в электрическом поле при дополнительном воздействии постоянного магнитного поля, сонаправленного с электрическим. Установлено, что в этом случае наблюдается уменьшение критической частоты возникновения лабиринтной структуры во всем изученном температурном диапазоне (рис. 8).

На рис. 9 продемонстрировано изменение структуры образца № 1 при повышении частоты электрического поля в отсутствие (а) и при дополнительном воздействии магнитного поля напряженностью 4.8 кА/м (б). Аналогичный характер трансформации структуры в таких условиях наблюдается и для образца № 2.

Следует отметить, что в тех случаях, когда лабиринтная структура в переменном электрическом поле возникает при дополнительном воздействии постоянного магнитного поля, она всегда подвижна (происходит перетекание жидкости от узла к узлу). При этом все протекающие процессы обратимы: при уменьшении напряженности магнитного поля до нуля структура возвращается к исходному состоянию. Заметим также, что включение только магнитного поля, перпендикулярного слою образца и такой же напряженности, не приводит к образованию лабиринтов в отсутствие переменного электрического поля.

Определение размерных параметров структурных решеток проводилось как с помощью наблюдений в оптический микроскоп, так и исследования дифракционного рассеяния света. С этой целью через слой эмульсии пропускался лазерный луч перпендикулярно плоскости слоя. Оказалось, что лабиринтная структура дает дифракционную картину в виде концентрических колец (рис. 10а, образец № 1). При этом расчеты периода структурной решетки лабиринтного типа при использовании условия максимума $d \sin \varphi = k \lambda$ дали значение $d = 8.5$ мкм, близкое к измеренному с помощью оптического микроскопа, снабженного объектом-микрометром, и равному 10 мкм. В случае структуры в виде системы микрокапель, полученной при более высокой частоте поля, дифракционная картина также представляет собой дифракционное кольцо, диаметр и характер которого, однако, отличаются от таковых для колец, полученных при дифракции света на лабиринтной структуре (рис. 10б).

Аналогичные дифракционные картины наблюдаются также при использовании образца № 2. В качестве сравнения на рис. 11а и 11б представлены дифракционные картины, полученные на лабиринтных решетках образцов № 1 и № 2 соответственно. Очевидно, их некоторые различия связаны с особенностями и размерными параметрами структурных решеток.

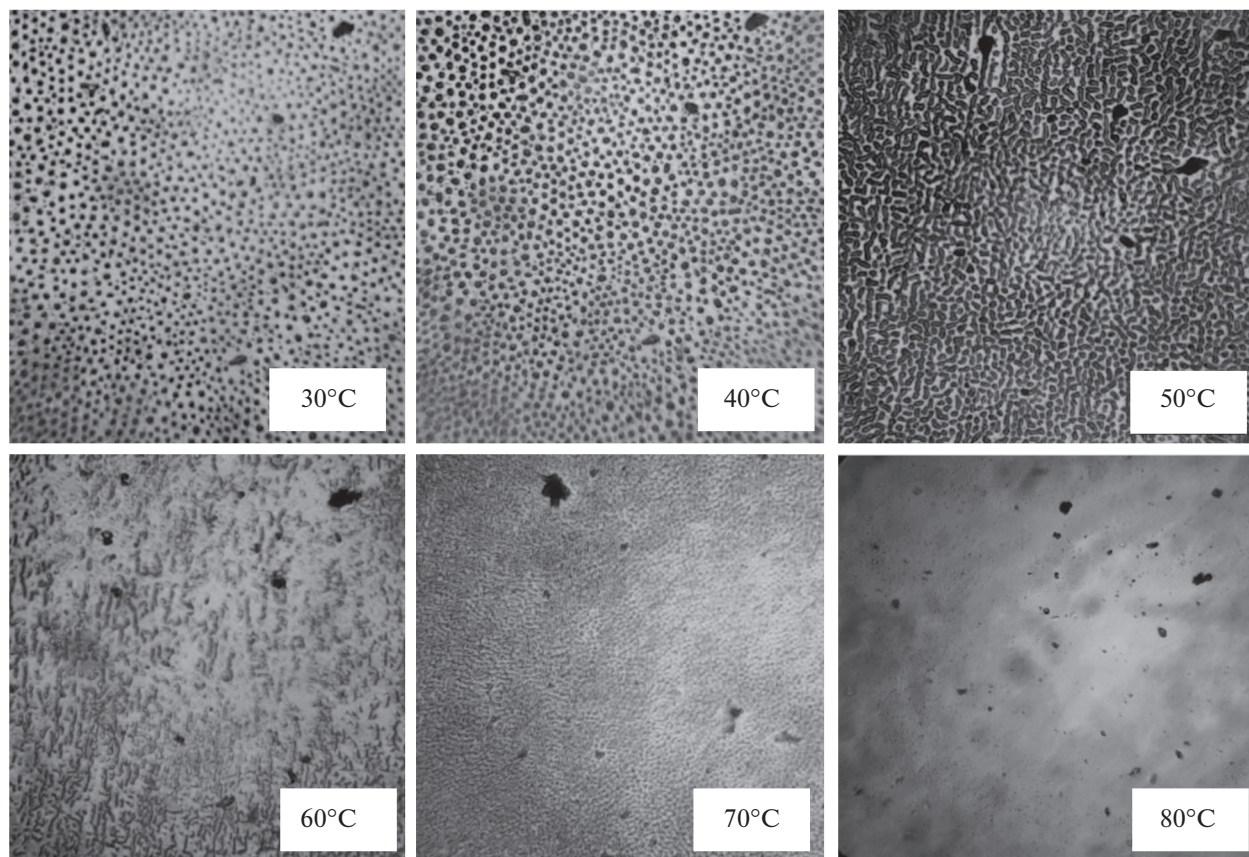


Рис. 5. Трансформация структуры в тонком слое магнитной эмульсии (образец № 1) при повышении температуры; $f = 2$ кГц, $U = 46$ В.

Явление дифракции света на микрокапельной структуре, формирующейся в тонком слое при воздействии перпендикулярного слою постоянного магнитного поля, ранее рассматривалось в работе [15]. Используемый для этого подход может быть применен и для изучения дифракции на системе подобных агрегатов, полученных в электрическом поле. Интенсивность дифрагированного света определяется значениями функций интерференции на сфере Эвальда [16], из построения которых вытекает условие для углового диаметра дифракционного кольца $\theta = 7\lambda/2\pi l$ (l расстояние между соседними каплями). Расчет I при использовании экспериментальных результатов исследования дифракции на структурных решетках, полученных в настоящей работе, дает значение 9.3 мкм, удовлетворительно согласующееся с определенным с помощью оптической микроскопии (10.9 мкм).

Для дополнительного анализа процесса рассеяния света исследуемыми структурами был выполнен численный расчет дифракционной картины на основе полученных микроскопических изображений структур. Для реализации расчета фотография структуры агрегатов преобразовыва-

лась в монохромный формат. Случайным образом размещались вторичные точечные источники сферических волн в координатах изображения, соответствующих белым пикселям. Всего в расчете использовалось 10^5 вторичных источников. Далее находилось суммарное распределение интенсивности от этих источников в интересующей области пространства:

$$I(\mathbf{r}) = \int_0^1 \left(\sum_{i=1}^N \frac{A}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_i|} \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda}|\mathbf{r} - \mathbf{R}_i| - 2\pi\zeta\right) \right)^2 d\zeta,$$

где $\zeta = \frac{t}{T}$, T – период волны, \mathbf{r} – координаты точек пространства, в которых вычисляется интенсивность, \mathbf{R}_i – координаты вторичных источников. В расчете также принималось во внимание, что интенсивность падающего луча лазера распределена по его сечению по закону Гаусса. На рис. 12 представлены результаты расчетов при помощи описанного алгоритма, которые подтверждают наблюдаемую визуально дифракционную картину.

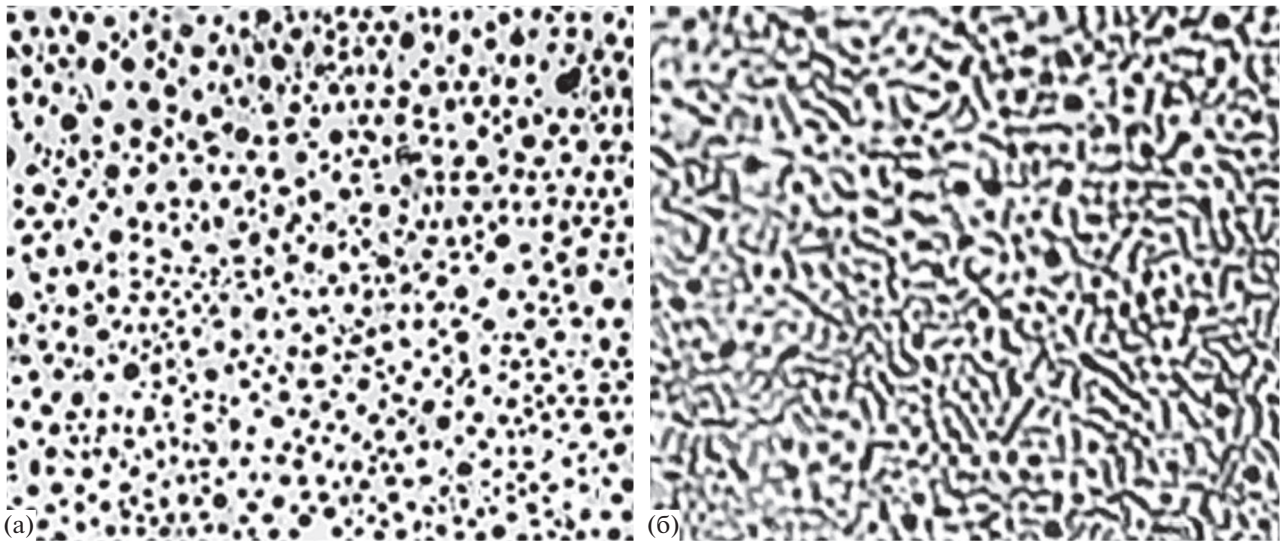


Рис. 6. Переход микрокапельной структурной решетки, образовавшейся в переменном поле частотой 2 кГц (а), в лабиринтную (б) при повышении температуры от 30 до 40°C (образец № 2).

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ И ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Как уже указывалось выше, воздействие низкочастотного электрического поля с небольшой напряженностью приводит к деформации микрокапель исследованных эмульсий (сплющиванию вдоль линий напряженности поля). Возможность такого рода деформации диэлектрических капель гомогенной жидкости, помещенных в несмешивающуюся с ними электропроводную среду, при

воздействии постоянного электрического поля ранее было показана в [12]. Она связывается с процессами накопления свободного заряда на межфазных поверхностях, характеризующихся максвелловским временем релаксации заряда:

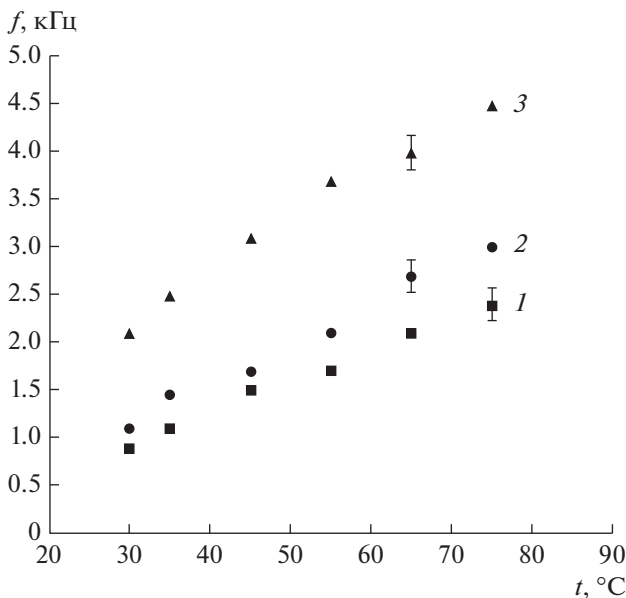


Рис. 7. Зависимость пороговой частоты возникновения лабиринтной структуры от температуры при разной объемной концентрации эмульсии (образец № 1): 1 – 5.7, 2 – 6.8, 3 – 9.3%.

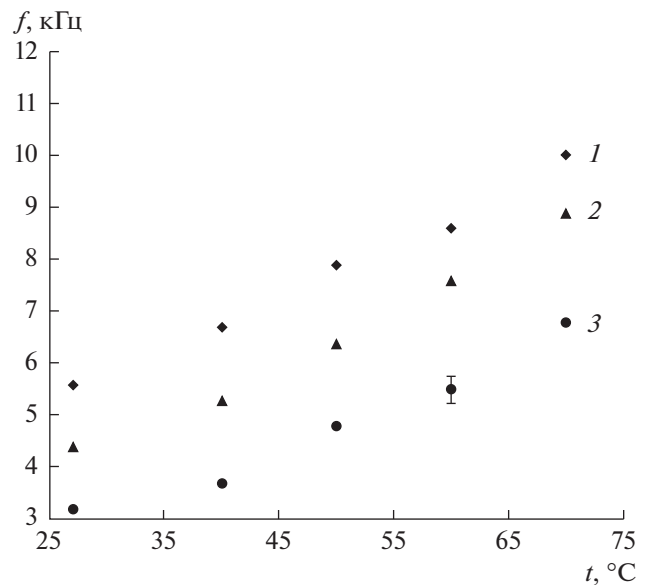


Рис. 8. Температурная зависимость пороговой частоты возникновения лабиринтной структуры в магнитной эмульсии в переменном электрическом поле при дополнительном воздействии постоянного магнитного поля, сонаправленного с электрическим (перпендикулярного плоскости слоя образца). 1 – $H = 0$, 2 – 2.8, 3 – 4.8 кА/м. Образец № 1, объемная концентрация дисперсной фазы – 20%.

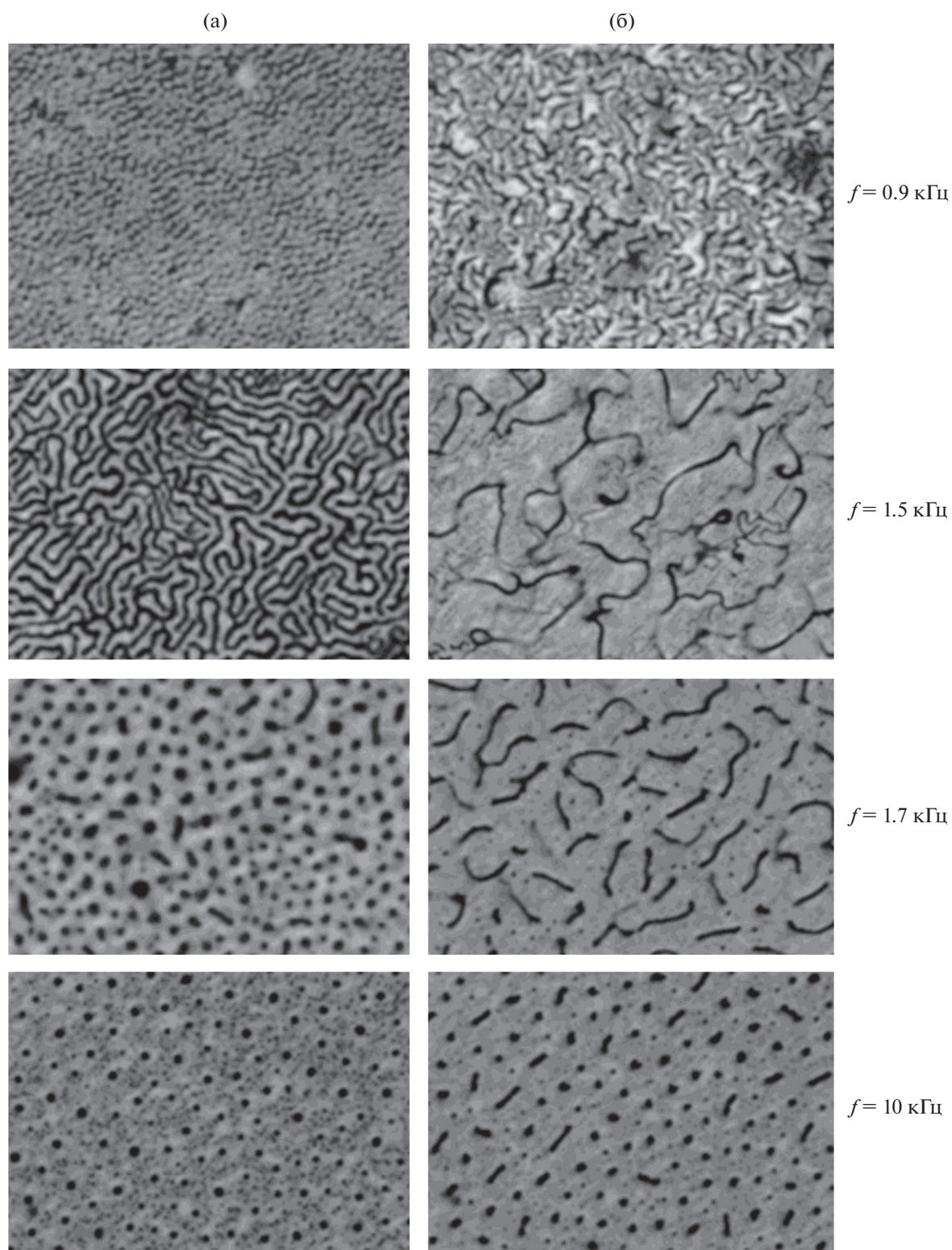


Рис. 9. Трансформация структуры эмульсии (образец № 2) при увеличении частоты электрического поля в отсутствие (а) и при дополнительном воздействии магнитного поля $H = 4.8$ кА/м (б).

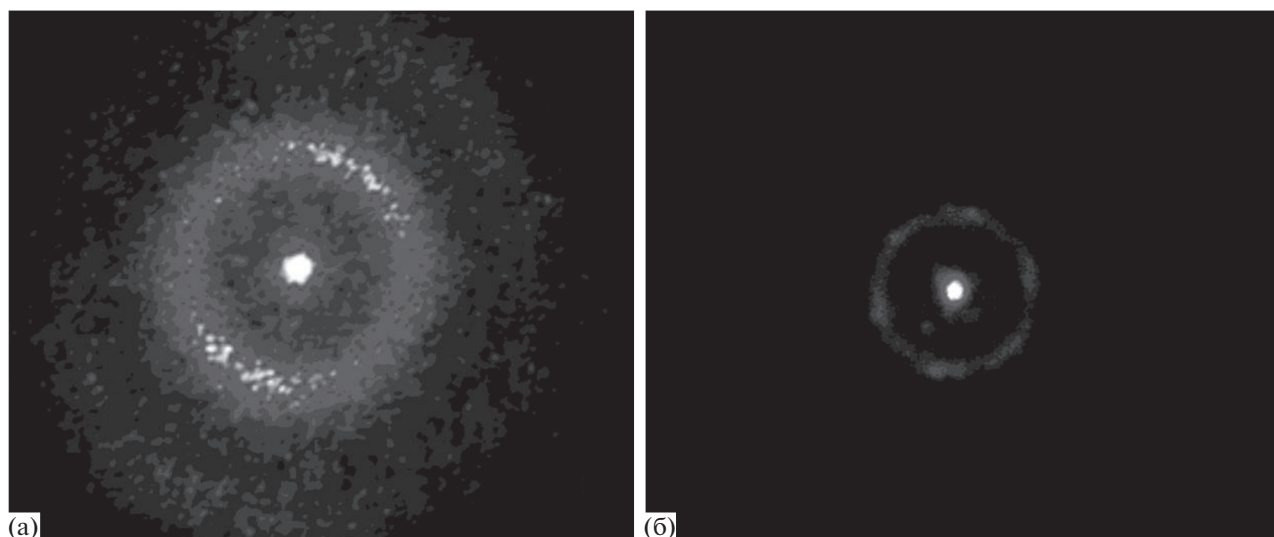


Рис. 10. Дифракция света на лабиринтной (а) и микрокапельной (б) структурных решетках.

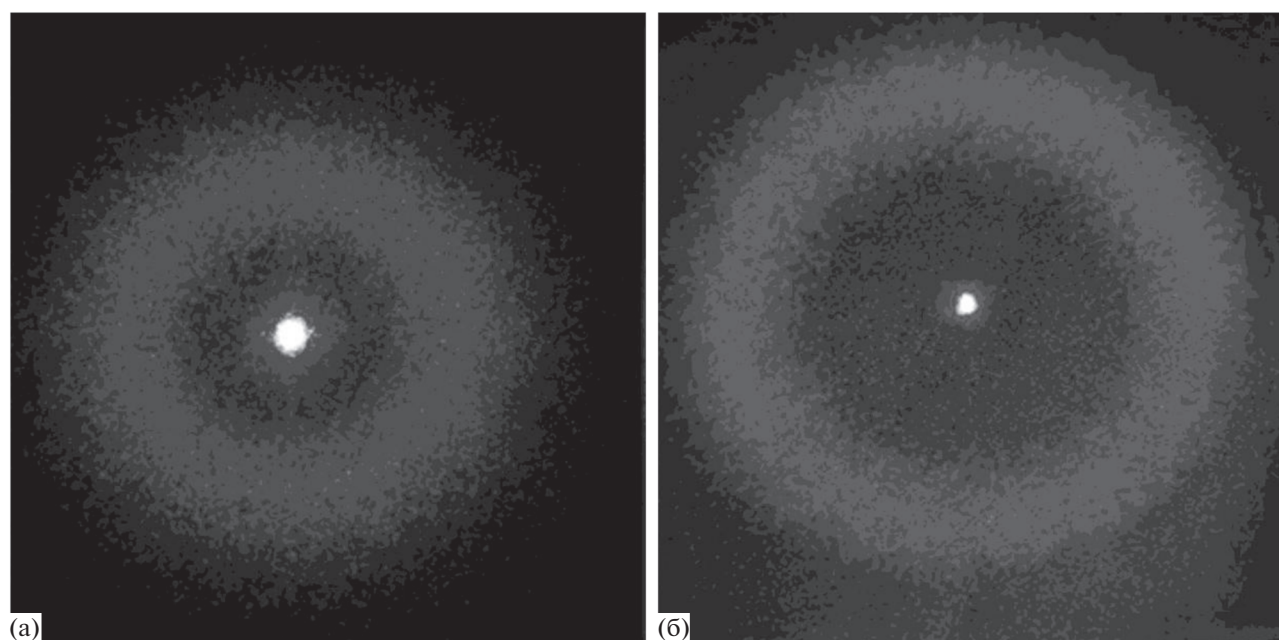


Рис. 11. Сравнение дифракционных картин, полученных на лабиринтных решетках образцов № 1 (а) и № 2 (б).

$$\tau_M = \frac{\epsilon_0(2\epsilon_e + \epsilon_i)}{(2\gamma_e + \gamma_i)}, \quad (1)$$

где ϵ_i и ϵ_e – диэлектрические проницаемости, а γ_i и γ_e – проводимости капли и окружающей их дисперсионной среды соответственно.

Вследствие этого на поверхности капли возникает трансверсальное электрическое напряжение, которое генерирует течение внутри и вне

капли. В работах [17, 18] теоретически показано, что в таких ситуациях возможны отрицательная эффективная вязкость и колебательная электрогидродинамическая неустойчивость. При этом существенное значение имеет жидкое состояние гетерогенных включений (микрокапель). В противном случае, вследствие стремления тела анизотропной формы ориентироваться в электрическом поле в направлении, соответствующем минимальному значению коэффициента деполя-

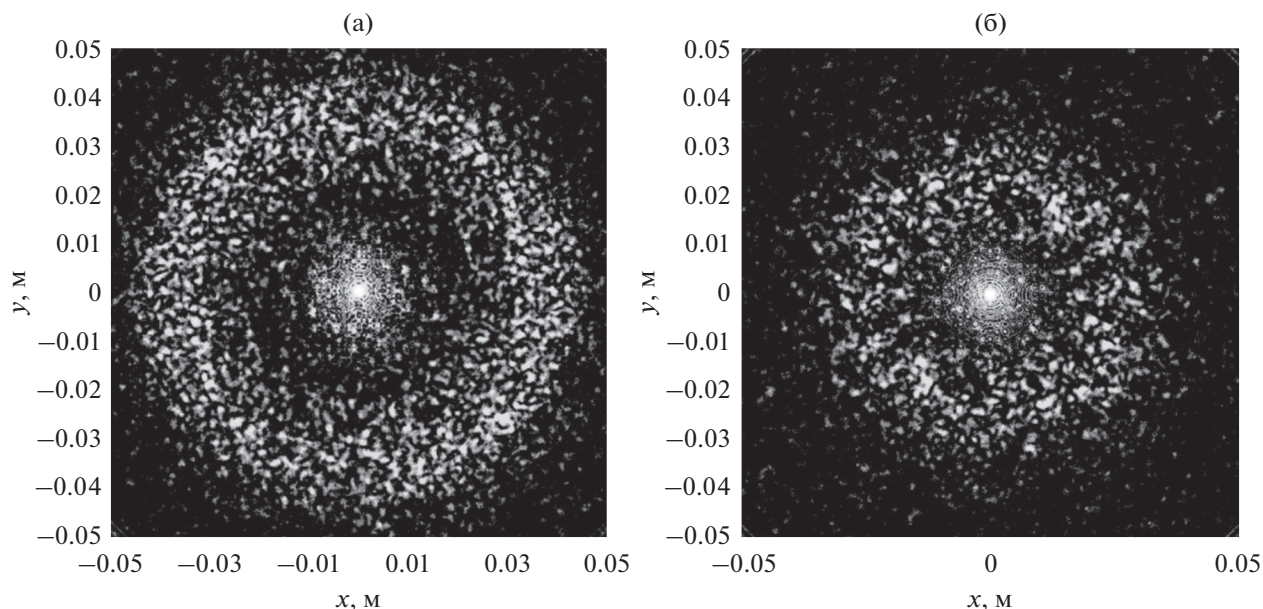


Рис. 12. Результаты расчета дифракционной картины на лабиринтной (а) и микрокапельной структуре (б).

ризации, устойчивое состояние тела в виде сплюснутого вдоль поля эллипсоида было бы невозможным. Для капли жидкости оно реализуется в достаточно слабых полях благодаря явлению релаксации анизотропии формы капли и зависит от соотношения ее времени и времени собственного поворота деформированной капли в электрическом поле. Время релаксации анизотропии формы капли зависит от коэффициентов вязкости вещества капли и омывающей среды (η_i , η_e), радиуса невозмущенной капли r_0 и коэффициента межфазного натяжения σ [19]:

$$\tau_a = \frac{r_0(16\eta_e + 19\eta_i)(3\eta_e + 2\eta_i)}{40\sigma(\eta_i + \eta_e)}. \quad (2)$$

Если характерное время поворота капли в электрическом поле $\tau_m = \delta/(\epsilon_0 r_0^3 E^2)$ (δ – коэффициент вращательного трения эллипсоидальной капли) больше времени релаксации ее формы, то может сохраняться устойчивое положение капли, сплюснутой вдоль направления поля.

Однако повышение напряженности электрического поля может привести к колебательной неустойчивости положения деформированных каплей, теоретическое рассмотрение которой для твердых эллипсоидальных частиц ранее проводилось Цеберсом [17]. В частности, им показано, что колебательная неустойчивость таких объектов наступает при условии

$$E^2 > E_c^2 = \delta/\tau_\perp (\kappa_\perp^\infty - \kappa_\parallel^0), \quad (3)$$

где κ^0 и κ^∞ – статическая и высокочастотная поляризуемости.

Возможность проявления колебательной неустойчивости для жидких микрокапель ранее показана в работе [20]. Вместе с тем, в этом случае она может иметь другие причины и более сложный характер, чем ее аналог для жестких эллипсоидов.

Для выяснения возможности использования рассмотренных выше подходов при объяснении полученных в настоящей работе результатов были проведены расчеты времени релаксации формы каплей τ_a и максвелловского времени релаксации свободных зарядов τ_m , которые дали для первого и второго образцов значения $\tau_a = 1.02$ с, $\tau_m = 2.6 \times 10^{-5}$ с и $\tau_a = 0.81$ с, $\tau_m = 4.7 \times 10^{-5}$ с соответственно.

Кроме того, был проведен расчет зависимости времени поворота исследованных микрокапель от напряженности электрического поля. В этом случае использовалась приведенная выше формула $\tau_m = \delta/(\epsilon_0 r_0^3 E^2)$, при этом коэффициент вращательного трения эллипсоидальной капли определялся с учетом ее жидкого состояния с помощью выражения [21]

$$\delta = \eta_e V \frac{(n_{\parallel} - n_{\perp}) \frac{N}{2} \left(\frac{a-b}{b} - \frac{a}{a} \right) - n'(a^2 + b^2) \left[1 + \frac{N}{2} \left(\frac{a+b}{b} + \frac{b}{a} \right) \right]}{(a^2 n_{\perp} + b^2 n_{\parallel}) n'}$$

$$N = \frac{4abn'}{\left(\frac{a-b}{b} - \frac{a}{a} \right)^2 \left(1 - \frac{n_{\parallel}}{\eta_e} \right) (a^2 n_{\perp} + b^2 n_{\parallel}) n' - \left(\frac{a-b}{b} - \frac{a}{a} \right) \left(\frac{a}{b} n_{\perp} - \frac{b}{a} n_{\parallel} \right) - 2abn' \left(\frac{a+b}{b} + \frac{b}{a} \right)}, \quad (4)$$

$$n' = \frac{n_{\parallel} - n_{\perp}}{a^2 - b^2},$$

где V – объем капли, n_{\perp} и n_{\parallel} – деполяризующие факторы вдоль соответствующих осей:

$$n_{\perp} = \frac{1 + e^2}{e^3} (e - \operatorname{arctg} e),$$

$$n_{\parallel} = (1 - n_{\perp})/2, \quad e = \sqrt{\frac{a^2}{b^2} - 1}.$$

На рис. 13 приведен график зависимости времени поворота деформированной капли среднего размера от напряженности электрического поля. Здесь же прямой линией, параллельной оси абсцисс, показано значение времени релаксации анизотропии формы такой капли.

Как следует из рисунка, при достаточно малых напряженностях поля (до ≈ 180 кВ/м) время поворота капель, действительно, может быть меньше времени релаксации их формы. При повышении напряженности поля время поворота капель становится меньше времени релаксации формы, оставаясь, однако, больше, чем максвелловское время релаксации заряда во всем исследованном

интервале значений напряженности поля. Отметим, что согласно результатам проведенных экспериментальных исследований подача на ячейку напряжения выше 30 В приводит к развитию электрогидродинамических течений в межэлектродном пространстве и полному разрушению микрокапель эмульсии.

Следует отметить, что в работах [4, 12, 17] рассматривалось возникновение электрогидродинамических течений вокруг капель без учета их местоположения относительно электродов. Однако при проведении экспериментов используются тонкие слои эмульсий, так как в противном случае наблюдения за микрокаплями затруднены. Очевидно, в этом случае нельзя пренебрегать влиянием на структурные превращения процессов, связанных с формированием вблизи электродов объемного заряда. Действительно, в слабо проводящих неоднородных жидких средах в межэлектродном пространстве характерно развитие электрогидродинамических вихревых течений [22], что также наблюдается в исследованных средах. Одной из характеристик подобных электроконвекционных явлений является время гидродинамической релаксации жидкости в слое. Его оценка возможна при использовании выражения [23]

$$\tau_r = \frac{2\rho d^2}{\eta}, \quad (5)$$

где ρ и η – плотность и вязкость жидкой среды соответственно, d – толщина слоя. Проведенные расчеты для исследованных эмульсий дали значение $\tau_r = 2.9 \times 10^{-4}$ с.

Очевидно, рассмотренные механизмы деформации капель, а также развитие электрогидродинамических течений в межэлектродном пространстве возможны в случае низкочастотного электрического поля, когда время релаксации свободного заряда существенно меньше периода воздействующего поля. Увеличение частоты поля должно приводить к подавлению электрогидродинамических течений в объеме слоя эмульсии, при этом условием существенного подавления течений может быть соизмеримость произведения частоты поля на время гидродинамической релаксации $\omega\tau_r$ с единицей. Расчеты, проведен-

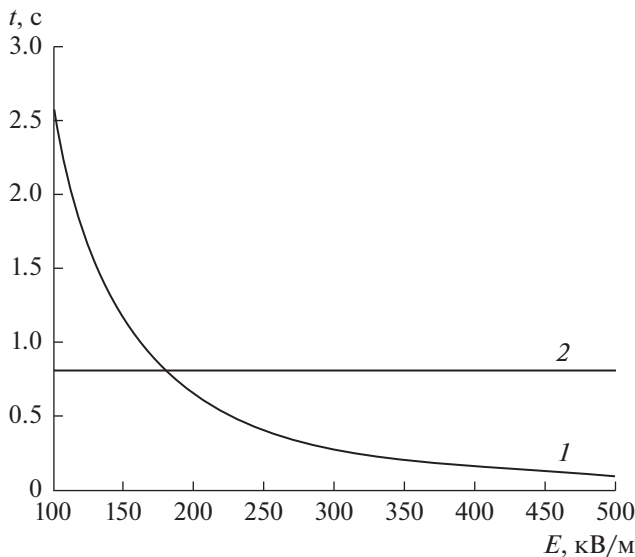


Рис. 13. Зависимость времени поворота эллипсоидальной капли от напряженности электрического поля (1) и время релаксации анизотропии формы этой же капли (2).

ные при использовании этого условия, дали для частоты прекращения межэлектродных течений значение, удовлетворительно согласующееся с данными экспериментальных наблюдений. После видимого прекращения межэлектродных течений, последующее повышение частоты приводит к восстановлению микрокапель до первоначальных размеров за счет коалесценции мельчайших капелек, образовавшихся ранее в результате разрушения исходных микрокапель при низких частотах. Очевидно, эти микрокапли первоначально принимают дискообразную форму, так как максвелловское время релаксации свободных зарядов оказывается намного меньшим периода поля и вокруг и внутри капель сохраняется течение жидкости. Последующее образование из таких восстановивших свои размеры капель лабиринтной структуры связано с невозможностью поворота эллипсоидальной капли под действием поля в положение, соответствующее минимальному значению деполяризующего фактора вследствие превышения временем поворота капли периода поля. В этом случае снижение деполяризующего фактора возможно при формировании из сплюснутых капель лабиринтной структуры, что следует из известных результатов исследования формирования лабиринтной структуры из тонких пленок магнитных жидкостей при воздействии магнитного поля [24].

При более высоких частотах, когда на форму структурных образований, вследствие уменьшения интенсивности движения зарядов, начинают существенно влиять поляризационные эффекты, лабиринтная структурная сетка трансформируется в систему микрокапель, равномерно распределенных в плоскости слоя. При этом микрокапли, согласно [3], могут при достаточно высоких частотах принимать вытянутую вдоль направления поля форму. Вследствие поляризации в электрическом поле капли приобретают дипольные моменты, их взаимодействие в первом приближении можно считать дипольным. Поскольку движение капель ограничено в плоском слое, а поле направлено перпендикулярно слою, взаимодействие капель носит характер отталкивания. Как показано в [14], устойчивая конфигурация системы диполей в этом случае может реализоваться в виде гексагональной решетки. Степень упорядоченности при этом зависит от параметра межчастичного взаимодействия и возрастает с ростом напряженности внешнего поля, индуцирующего наведенные моменты капель. Очевидно, с недостаточной большой поляризацией и связано отсутствие высокой степени упорядоченности в наблюдаемой системе микрокапель, сформированной в высокочастотном электрическом поле.

Следует отметить, что подтверждением связи типа структурных решеток с процессами релаксации заряда является тот факт, что для эмульсии с

большим максвелловским временем релаксации пороговые значения частоты образования как лабиринтной, так и микрокапельной структуры оказываются ниже, чем для эмульсии с меньшим значением этого времени. Очевидно, характер структуры определяется значением параметра $\omega\tau_m$. Проведенные расчеты показали, что значения этого параметра при частоте возникновения лабиринтной структуры в обоих образцах различаются незначительно и практически совпадают при частоте формирования микрокапельной структурной решетки. Отметим, что значение $\omega\tau_m$ при этом остается меньшим единицы (0.2), что может указывать на неполное подавление течений вокруг и внутри капли.

Пороговые значения частоты поля, соответствующие изменению типа структурных решеток, должны зависеть от температуры вследствие зависимости от нее максвелловского времени релаксации заряда. Действительно, изменение температуры приводит к изменению диэлектрической проницаемости и проводимости вещества капель и окружающей их среды. Изменение диэлектрической проницаемости при повышении температуры характерно для полярных диэлектриков, для которых $\epsilon \sim 1/T$. При этом изменение удельной электропроводности является более существенным. Ее увеличение при повышении температуры связано с понижением вязкости раствора и увеличением степени диссоциации молекул жидкости либо примесей. В естественных условиях проводимость слабо проводящих жидкостей обусловлена термоионизацией молекул примесей. Связь между проводимостью среды и ее температурой может быть представлена формулой Френкеля [25]:

$$\gamma \approx \frac{1}{T} \exp\left(-\frac{T_0}{T}\right). \quad (6)$$

Учитывая, что множитель $1/T$ изменяется при варьировании температуры гораздо медленней, чем $\exp(-T_0/T)$, можно сделать вывод, что зависимость электропроводности от температуры во всех случаях является более выраженной, чем температурная зависимость диэлектрической проницаемости. Кроме того, повышение температуры приводит к уменьшению диэлектрической проницаемости, тогда как проводимость при этом растет. Все это приводит к изменению максвелловского времени релаксации заряда и, как следствие, к обнаруженному изменению критических значений частоты, соответствующих формированию структурных решеток обоих типов при повышении температуры.

Влияние дополнительно приложенного перпендикулярно плоскости слоя магнитного поля на критические значения частоты, соответствующие формированию структурных решеток в элек-

трическом поле (проиллюстрированное для лабиринтной решетки на рис. 9), очевидно, связано с объединением мельчайших капельных фрагментов, образовавшихся ранее в результате разрушения исходных микрокапель в низкочастотном поле. В этом случае его воздействие приводит к эффекту противоположному возникающему при повышении температуры. В пользу этого утверждения могут свидетельствовать результаты работы [26], где рассмотрены структурные превращения в магнитной жидкости при варьировании концентрации дисперсной фазы, напряженности магнитного поля и температуры. Вместе с тем, не исключено влияние магнитного поля и непосредственно на движение свободных зарядов, создающего электрогидродинамические течения в таких средах. Вероятно, с этим связана подвижность лабиринтной структуры (перетекание жидкости от узла к узлу), наблюдающаяся при дополнительном воздействии магнитного поля. Особенности влияния перпендикулярно направленного плоскости слоя магнитного поля на форму микрокапельных агрегатов при достаточно высокой частоте электрического поля (рис. 9б, $f = 1.7$ и 10 кГц) также могут указывать на неполное подавление электрогидродинамических течений вокруг капель в исследованном частотном диапазоне переменного электрического поля.

Таким образом, в настоящей работе исследованы особенности взаимодействия магнитных эмульсий с переменным электрическим полем. Установлено, что воздействие переменного электрического поля приводит к изменениям структуры эмульсии, характер которых существенно зависит от амплитуды и частоты поля, а также температуры. В частности, показана возможность формирования в таких средах различных структурных решеток, изменение типа которых возможно путем варьирования частоты поля, изменения температуры и дополнительного воздействия постоянным магнитным полем. Исследование параметров образующихся структур проведено с помощью оптической микроскопии и дифракционного рассеяния света. Обнаруженные эффекты связаны с движением жидких фаз под воздействием касательных электрических напряжений, возникающих на межфазных границах. При этом при анализе результатов учитывались соотношения характерных времен релаксации исследованных процессов и периода воздействующего переменного электрического поля.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках базовой части государственного задания вузам в сфере научной деятельности (проект № 0795-2020-0030).

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Bacri J.-C., Salin D., Massart R.* // J. Phys. (Paris) Lett. 1982. V. 43. P. 179.
2. *Bacri J.-C., Salin D.* // J. Phys. (Paris) Lett. 1982. V. 43. P. 649.
3. *Диканский Ю.И., Цеберс А.О.* // Магнитная гидродинамика. 1990. № 2. С. 47.
4. *Диканский Ю.И., Цеберс А.О., Шацкий В.П.* // Магнитная гидродинамика. 1990. № 1. С. 32.
5. *Диканский Ю.И., Нечаева О.А.* // Коллоид. журн. 2003. Т. 65. С. 338.
6. *Dikansky Y.I., Nechaeva O.A.* // J. Magn. Magn. Mater. 2005. V. 289. P. 90.
7. *Tyatyushkin A.N., Velarde M.G.* // J. Colloid Interface Sci. 2001. V. 235. P. 46.
8. *Dikansky Y.I., Zakinyan A.R., Tyatyushkin A.N.* // Phys. Rev. E. 2011. V. 84. 031402.
9. *Timonen J.V.I., Latikka M., Leibler L., Ras R.H.A., Ikkala O.* // Science. 2013. V. 341. P. 253.
10. *Bashtovoi V., Reks A., Baev A., Mansoor, A.-J.T.M.* // J. Magn. Magn. Mater. 2017. V. 431. P. 42.
11. *Kvasov D., Naletova V., Beketova E., Dikanskii Yu.* // J. Magn. Magn. Mater. 2017. V. 431. P. 161.
12. *Торза С., Кокс Р., Мейсон С.* // Реология суспензий / Под ред. Гогосова В.В., Николаевского В.Н. М.: Мир, 1975. С. 285.
13. *Zakinyan A., Dikansky Y.* // Colloids Surf. A. 2011. V. 380. P. 314.
14. *Блум Э.Я., Майоров М.М., Цеберс А.О.* Магнитные жидкости. Рига: Зинатне, 1989.
15. *Bacri J.C., Salin D.* // J. Phys. (Paris) Lett. 1982. V. 43. P. 771.
16. *Гинье А.* Рентгенография кристаллов М.: Физматгиз, 1961.
17. *Цеберс А.О.* // Магнитная гидродинамика. 1980. № 2. С. 81.
18. *Цеберс А.О.* // Механика жидкости и газа. 1980. № 2. С. 86.
19. *Rallison J.M.* // Annu. Rev. Fluid Mech. 1984. V. 16. P. 45.
20. *Нечаева О.А.* Структурная организация магнитных коллоидов в электрическом и магнитном полях. Дис. ... канд. физ.-мат. наук. Ставрополь: СГУ, 2003.
21. *Morozov K.I.* // J. Exp. Theor. Phys. 1997. V. 84. P. 728.
22. *Болога М.К., Гросу Ф.П., Кожухарь И.А.* Электроконвекция и теплообмен. Кишинев: Изд-во Штиинца, 1977.
23. *Tóth-Katona T., Éber N., Vuka Á., Krekhov A.* // Phys. Rev. E. 2008. V. 78. 036306.
24. *Розенцвейг Р.* Феррогидродинамика. М.: Мир, 1989.
25. *Остроумов Г.А.* Взаимодействие электрических и гидродинамических полей. М.: Наука, 1979.
26. *Балабанов К.А., Диканский Ю.И., Полихрониди Н.Г.* // Магнитная гидродинамика. 1989. № 1. С. 117.