

ЭЛЕКТРИЗАЦИЯ СЛАБОПРОВОДЯЩИХ ЖИДКИХ ДИЭЛЕКТРИКОВ. АЛЬТЕРНАТИВНОЕ РЕШЕНИЕ

Ф.П. Гросу*, М.К. Болога**

*Государственный аграрный университет Молдовы,
ул. Мирчеица, 44, г. Кишинев, MD-2049, Республика Молдова, f.grosu@mail.ru

**Институт прикладной физики АИМ,
ул. Академией, 5, г. Кишинев, MD-2028, Республика Молдова, mbologa@phys.asm.md

Введение. Проблема электризации слабопроводящих жидких диэлектриков под воздействием внешних электрических полей актуальна в электрофизике жидкостей с различных точек зрения, и прежде всего – в связи с появлением и успешным развитием нового направления в физике жидкостей – электрогидродинамики (ЭГД), изучающей взаимодействия гидродинамических и электрических полей [1]. В большинстве случаев эти взаимодействия объясняются электризацией жидкостей под воздействием внешних полей, обусловленной хотя и малой, но все же отличной от нуля удельной электропроводности ($\sigma \neq 0$). Критерием учета этой проводимости является неравенство $\tau/t_* < 1$, где $\tau = \epsilon/\sigma$ – время электрической релаксации среды; ϵ – абсолютная диэлектрическая проницаемость; t_* – характерное время изменения внешнего электрического поля, в типичном случае переменного поля – это период его колебаний [2].

Обсуждаются различные механизмы электризации слабопроводящих жидкостей, в частности они подразделены на два класса [3, 4]: *равновесные* и *неравновесные*. К первому классу относятся механизмы, при которых между процессами диссоциации молекул (нейтралов) и рекомбинации заряженных компонентов существует динамическое равновесие, ко второму – механизмы, у которых такого равновесия нет. В первом случае задачи электризации математически значительно упрощаются за счет равенства нулю дивергенций парциальных токов, в то время как во втором – эти дивергенции выражаются сложными функциями координат и указанных процессов.

Классификацию типов электризации слабопроводящих жидкостей можно осуществить по распределению напряженности электрического поля $E(x)$ и плотности свободных объемных зарядов $\rho(x)$ между обкладками *плоскопараллельного* конденсатора (рис. 1) при наличии постоянного электрического поля [4].

На первых двух кадрах кривые $1, 1'$ и $2, 2'$ зависимости $E(x)$ монотонные. Это означает, что межэлектродный промежуток $0 \leq x \leq 2l$ заполнен одноименным объемным зарядом, в случае $(1, 1')$ – отрицательным, а $(2, 2')$ – положительным. Поэтому можно говорить о монополярной зарядке, положительной или отрицательной соответственно. На кадрах $(3, 3')$ и $(4, 4')$ убывание $E(x)$ переходит в возрастание (кривые $3, 3'$) или – наоборот (кривые $4, 4'$). Следовательно, межэлектродный слой разбивается на два подслоя, каждый заряжен разноименно знаку прилегающего электрода в случае $(3, 3)$, в случае $(4, 4')$ – одноименно. Поэтому этот тип зарядки принято называть гетеро- и гомозарядной или гетеро- и гомоэлектризацией соответственно. Распределение $(5, 5')$ приведено в [5] и относится к монополярной электризации, как и $(1, 1')$, однако в отличие от последнего зависимость $\rho(x)$ имеет экстремум. Кривые $6, 6'$ являются аналогом $5, 5'$, когда заряды меняются ролями, что хорошо видно из распределений для плотностей зарядов.

На кадрах $(7, 7)$ – $(9, 9')$ изображены случаи так называемых биполярных структур [7, 8], когда сами полуслои оказываются биполярно заряженными, причем на рис. 1 (кривые $7, 7'$) непосредственно прилегающий к аноду слой заряжен одноименно со знаком электрода, поэтому подслоя $0 < x < l$ является гомобиполярным, а правый $(l < x < 2l)$ – гетеробиполярным. Аналогично на кадрах $(8, 8')$, $(9, 9'')$ имеем соответственно гомо- и гетеробиполярную структуры. Кроме того, кривые 3 – 9 – $3'$ – $9'$ отражают некоторую симметрию (относительно центральной плоскости $x = l$), однако в действительности она далеко не полная, так как существенно могут различаться носители зарядов по электрофизическим свойствам (подвижности, валентности, потенциалу ионизации и др.). Заметим,

что распределения типа (7,7), (8,8') обнаружены авторами [6, 7], типа (9,9') – теоретически предсказанное [3].

В работе [4] приведено обширное исследование приведенных на рис. 1 типовых распределений поля и зарядов и с точки зрения различных механизмов электризации качественно объяснены все эти распределения, причем в рамках равновесного класса явлений электризации, за исключением кривых с боковыми экстремумами (двухгорбовых или двухъямочных), которые нашли объяснение в классе неравновесных механизмов.

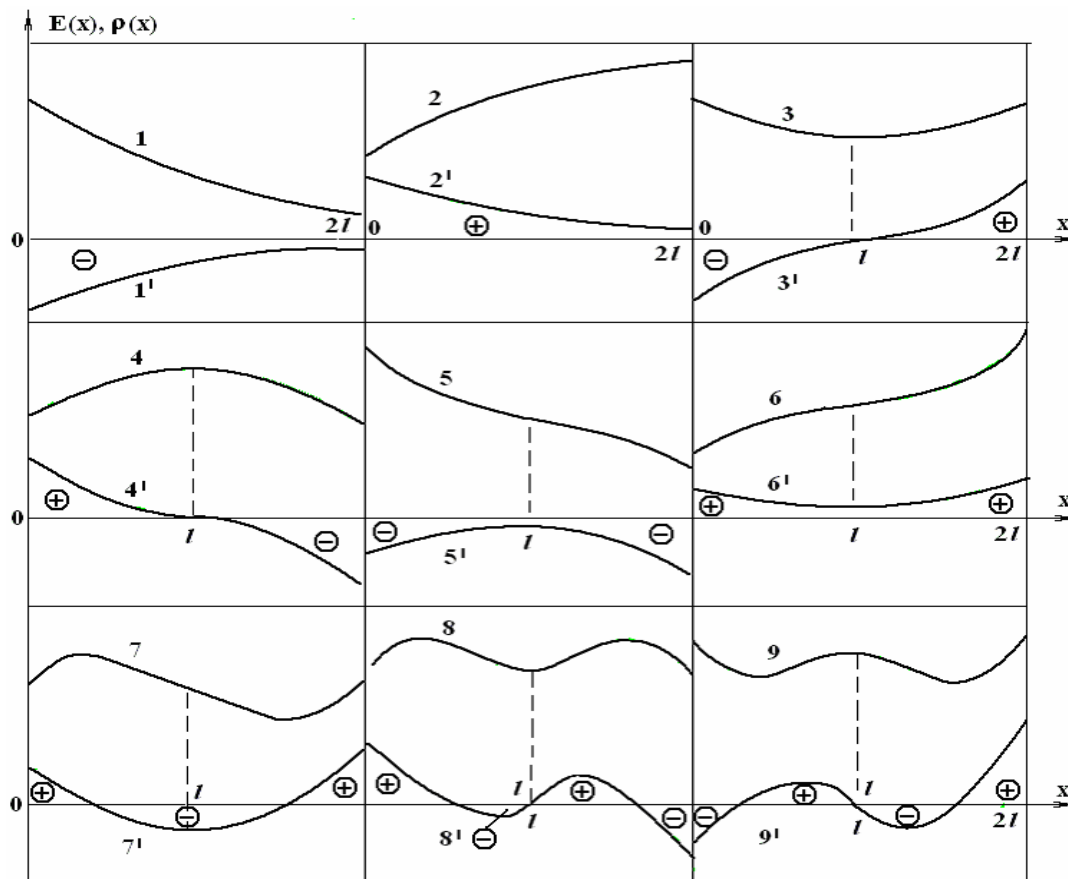


Рис. 1. Распределение зависимостей: $E(x)$ – нештрихованные, $\rho(x)$ – штрихованные номера

Ниже приводим общий математический подход простой к решению задач электризации, который, как оказалось, охватывает все обсуждаемые ее случаи, приведенные на рис. 1. Назван он альтернативным.

Исходные уравнения и основное уравнение для напряженности поля. Будем наблюдаемые закономерности интерпретировать на основе измеряемых параметров: разности потенциалов φ_s , плотности электрического тока j , низковольтной проводимости σ^* , коэффициентов подвижности k^\pm , диэлектрической проницаемости ε , геометрических размеров и зависимостей $j = j(\bar{E})$, $j = j(h)$, где h – толщина слоя, а также других параметров – по мере надобности. При этом примем за основу систему уравнений

$$j = \sigma E = const, \quad (1)$$

$$j = j^+ + j^-, \quad (2)$$

$$\sigma = k^+ \rho^+ + k^- \rho^-, \quad (3)$$

$$\rho^+ - \rho^- = \varepsilon E', \quad (4)$$

$$j^+ = k^+ \rho^+ E \neq const, \quad (5)$$

$$j^- = k^- \rho^- E \neq const, \quad (6)$$

к которой в некотором приближении приводится и многоионная среда, если ввести плотности зарядов и усредненные коэффициенты подвижностей носителей зарядов по формулам [3]:

$$\rho^{\pm} \equiv \sum \rho_i^{\pm} \Rightarrow \rho = \rho^+ - \rho^- \equiv \sum \rho_i^+ - \sum \rho_i^-; \quad k^{\pm} \equiv \frac{\sum k_i^{\pm} \rho_i^{\pm}}{\sum \rho_i^{\pm}}.$$

В этих уравнениях не учитываются диффузионные токи ввиду малости, не приводятся кинетические уравнения для производных $(j^{\pm})'$, а также граничные электрохимические условия. Вместо этого дополнена исходная система одним уравнением для j^+ (или j^-) в виде аппроксимирующего полинома третьего порядка:

$$j^+ = \alpha x^3 + \beta x^2 + \gamma x + \delta \Rightarrow j^- = j - \alpha x^3 - \beta x^2 - \gamma x - \delta, \quad (7)$$

где плотность полного тока j постоянна, экспериментально измеряемая величина, а потому известная; $\alpha, \beta, \gamma, \delta$ – неизвестные коэффициенты разложения, ошибку которого можно оценить априори, по остаточному члену ряда Маклорена. Второе уравнение является следствием первого. Третий порядок аппроксимации объясняется тем, что для E^2 получается аппроксимация 4-й степени по x , охватывающей все типовые случаи электризации, отраженные на рис. 1, включая сложные случаи биполярных структур, анализированные выше. Однако при надобности (нехватке точности) можно рассматривать следующие члены разложений. Заметим, что сам факт непостоянства парциальных плотностей тока (5)–(7) отражает неравновесные механизмы электризации.

Уравнения (2), (4) – (6) приводят к подсистеме:

$$j^+ = jk^*/k^- + \varepsilon k^* EE'; \quad j^- = jk^*/k^+ - \varepsilon k^* EE' \quad , \quad (8)$$

где введено обозначение для некоторой эффективной подвижности

$$k^* \equiv k^- k^+ / (k^+ + k^-). \quad (9)$$

Интегрирование первого уравнения (8) дает *основное уравнение* для квадрата напряженности электрического поля в общем виде:

$$(\varepsilon k^* E^2)/2 = (\alpha x^4)/4 + (\beta x^3)/3 + (\gamma x^2)/2 + (\delta - jk^*/k^-)x + C, \quad (10)$$

где C – постоянная интегрирования. Из этого уравнения, задавая неизвестным коэффициентам различные значения, можно, как было отмечено, получить практически все распределения, приведенные на рис. 1.

Частные случаи. 1. Положив в (10) $\alpha = \beta = \gamma = 0$, а также

$$\delta - (jk^*/k^-) = 0, \quad (11)$$

получим случай $E = \text{const}$, то есть $\rho = 0$, что согласуется с результатами [4]:

$$j^{\pm} = jk^{\pm} / (k^+ + k^-) \Leftrightarrow j^+ / k^+ = j^- / k^-. \quad (12)$$

Если же $\alpha = \beta = \gamma = 0$ при неравенстве нулю выражения (11), что равносильно

$$j^+ / k^+ \neq j^- / k^-, \quad (13)$$

получим корневые монотонные зависимости типа (2,2), также рассмотренные в [4]:

$$E \approx \sqrt{(\delta - jk^*/k^-)x + C}. \quad (14)$$

Случай $\alpha = \beta = 0$, но $\gamma \neq 0$ соответствует гомозарядному распределению (4,4') при $\gamma < 0$ либо гетерозарядному (3,3') при $\gamma > 0$.

Распределение с двумя или тремя экстремумами можно получить, учитывая в (10) слагаемые 3-й и 4-й степени. Причем двухгорбовое распределение (8,8') возникает, если $\alpha < 0$, в противном случае кривая $E(x)$ окажется с двумя впадинами (9,9'). Кроме того, если в (10) коэффициенты при нечетных степенях равны 0, то есть $E^2(x) = E^2(-x)$, то соответствующие распределения оказываются симметричными относительно средней плоскости конденсатора (начало координат помещено в центре слоя).

Из сказанного следует, что предлагаемый подход сводится к выяснению физического смысла коэффициентов разложения и их последующему нахождению. Рассмотрим более сложный пример, когда $\alpha = \beta = 0$, $\gamma \neq 0$, принимая для простоты $k^+ = k^-$ и прежнее условие (11):

$$\delta = j/2 \Rightarrow j^+ = j/2 + \gamma x; \quad j^- = j/2 - \gamma x. \quad (15)$$

На электродах соответственно

$$j^+(-h/2) = (j - \gamma h)/2; \quad j^-(-h/2) = (j + \gamma h)/2. \quad (16)$$

Для плотности объемных зарядов

$$\rho(x) = 2\gamma x / (kE), \quad (17)$$

откуда, как было отмечено, при $\gamma < 0$ имеем гомозарядное распределение, а при $\gamma > 0$ – гетерозарядное. Граничные условия имеют вид

$$j^+(-h/2) = (j - \gamma h)/2 = 0, \quad \gamma = j/h, \quad j^-(-h/2) = (j + \gamma h)/2 = j, \quad (18)$$

а из формул (15), (17) получим

$$j^\pm = j \cdot [(1/2) \pm (x/h)], \quad (19)$$

$$\rho = 2jx / (khE). \quad (20)$$

Для квадрата напряженности имеем

$$E^2 = 2jx^2 / (\varepsilon kh) + C, \quad (21)$$

где C – видоизмененная постоянная из (10), которую можно найти из условия

$$\int_{-h/2}^{h/2} E dx = \varphi_s, \quad (22)$$

однако интегрирование приводит к довольно сложному трансцендентному уравнению, но проще проинтегрировать (21) и найти постоянную C приближенно:

$$\int_{-h/2}^{h/2} E^2 dx = jh^2 / (6\varepsilon k) + Ch. \quad (23)$$

Введя отклонение от среднего $\bar{E} = \varphi_s / h$, для этого же интеграла будем иметь

$$\int_{-h/2}^{h/2} (\bar{E} + \Delta E)^2 dx \cong \bar{E}^2 h, \quad (24)$$

где пренебрегли среднеквадратичным отклонением по сравнению с \bar{E} .

Из (23) и (24) находим

$$C \cong \bar{E}^2 - jh / (6\varepsilon k)$$

и с учетом этого

$$E / \bar{E} \cong \sqrt{(2jh / \varepsilon k \bar{E}^2) \cdot [(x^2/h^2) - (1/12)] + 1}. \quad (25)$$

Это равенство носит приближенный характер из-за приближения (24). Точное распределение можно выразить через $E(0) \equiv E_0$ согласно (21):

$$E = \sqrt{2jx^2 / (\varepsilon kh) + E_0^2}. \quad (26)$$

Или, вводя $E_0 = j / \sigma_0$, где $\sigma_0 = \sigma(0)$, получим

$$\eta(\xi) \equiv E / E_0 \cong \sqrt{1 + \lambda \xi^2}, \quad (27)$$

где $\xi \equiv x/h$, $\eta(\xi)$ – безразмерная напряженность поля,

$$\lambda \equiv 2h\sigma_0^2 / (\varepsilon kj) \quad (28)$$

– безразмерный параметр. Преимущество (27) по сравнению с (25) состоит в том, что не возникает иллюзий о возможности отрицательных значений под корнем в (25), хотя, с другой стороны, (27) содержит менее удобные для измерений параметры E_0 , σ_0 .

Распределение (27) гетерозарядное, а потому механически устойчиво. Допустив в (18) $j^-(-h/2) = 0$, $j^+(-h/2) = j$, получили бы $\gamma = -j/h$ и вместо (27) имели бы:

$$\eta(\xi) \equiv E / E_0 = \sqrt{1 - \lambda \xi^2}, \quad (29)$$

что означает неустойчивое гомозарядное распределение поля. Минимальная напряженность достигается на поверхности электродов ($\xi = \pm 1/2$):

$$(E / E_0)_{\min} = \sqrt{1 - (\lambda/4)}. \quad (30)$$

Отсюда при

$$\lambda = 4 \Leftrightarrow j_{kp} = h \sigma_0^2 / (2 \varepsilon k) \quad (31)$$

напряженность поля достигает нуля, что равносильно бесконечно большой электропроводности у электродов либо бесконечно малой в средней части конденсатора. Такая ситуация физически возможна при очень высоких скоростях окислительно-восстановительных реакций на электродах и рекомбинации внутри жидкости.

В общем случае на электродах оба тока отличны от нуля. Обозначив

$$j^+(-h/2) = (j - \gamma h) / 2 \equiv j_s^+, \quad j^-(-h/2) = (j + \gamma h) / 2 \equiv j_s^-, \quad (32)$$

найдем

$$\gamma \equiv -(j_s^+ - j_s^-) / h \equiv -\Delta j_s / h. \quad (33)$$

Это соотношение можно принять за интерпретацию физического смысла γ -величины разности скоростей электромеханических реакций на электродах положительных и отрицательных носителей заряда. При этом распределение $E(\xi)$ имеет вид:

$$\eta = \sqrt{1 + (2\gamma h \xi^2) / (\varepsilon k E_0^2)}, \quad (34)$$

причем если: $\gamma > 0$ – распределение гетерозарядное; $\gamma = 0$ – нейтральное; $\gamma < 0$ – гомозарядное.

Рассмотрим распределение, которое часто встречается на практике, – линейную зависимость электропроводности от координаты [1]:

$$\sigma = \sigma_0 + \mu x \Rightarrow E = j / (\sigma_0 + \mu x), \quad (35)$$

где μ – коэффициент пропорциональности. Следовательно,

$$\rho = -j \varepsilon \mu / (\sigma_0 + \mu x)^2,$$

отсюда

$$\vec{E} \cdot \nabla \rho = \rho' E = 2 j^2 \varepsilon \mu^2 / (\sigma_0 + \mu x)^4 > 0,$$

то есть независимо от знака μ отмеченное распределение механически устойчиво, что может служить предпосылкой для использования данного состояния в целях стабилизации среды, например при ее очистке или фракционировании.

Биполярные структуры. Ввиду важности рассмотрим возникновение биполярных структур отдельно. Для этого исследуем первую и вторую производные функции (10). Имеем

$$(\varepsilon k^* E^2 / 2)' = \alpha x^3 + \gamma x = x(\alpha x^2 + \gamma), \quad (36)$$

$$(\varepsilon k^* E^2 / 2)'' = 3\alpha x^2 + \gamma,$$

где, рассматривая четные распределения $E(x)$, учли $\beta = 0$; $\delta - j k^* / k^- = 0$.

Согласно рис. 1 биполярные структуры (8,8'), (9,9') характеризуются одним экстремумом в центре слоя ($x = 0$) и двумя симметричными боковыми:

$$x_{\pm} = \pm \sqrt{-\gamma / \alpha}. \quad (37)$$

С учетом этого вторая производная в экстремальных точках определяется выражением

$$\varepsilon k^* E E'' = -2\gamma.$$

Откуда видно, что “горбы” должны наблюдаться при $\gamma > 0$. Знак α согласно (37) для любых биполярных структур должен быть противоположным γ , в случае боковых максимумов – отрицательным. Для биполярных структур с минимумами (“впадинами”) $\gamma < 0$ и $\alpha > 0$. Распределение поля в обоих случаях определяется формулой

$$\eta(\xi) = \left[1 + (h^2 \gamma / \varepsilon k^* E_0^2) \cdot \xi^2 \left(1 + (\alpha h^2 / 2\gamma \xi^2) \right) \right]^{1/2} \quad (38)$$

с двумя неизвестными параметрами α и γ , которые можно найти по координате ξ_m максимума напряженности η_m . Для этого представим (38) в виде

$$\eta(\xi) = \sqrt{1 + A \xi^2 + B \xi^4}, \quad (39)$$

где A и B – видоизмененные постоянные α и γ . Приравняв нулю производную, найдем

$$\xi_m^2 = -\frac{A}{2B}. \quad (40)$$

Подставив это выражение в (39), получим второе уравнение для A и B :

$$\eta_m^2 - 1 = -\frac{A^2}{4B}. \quad (41)$$

Решив (40) и (41), найдем:

$$A = \frac{2(\eta_m^2 - 1)}{\xi_m^2}; \quad B = -\frac{\eta_m^2 - 1}{\xi_m^4}. \quad (42)$$

Подставив (42) в (39), получим окончательную зависимость для напряженности поля:

$$\eta(\xi) = \sqrt{1 + \frac{2(\eta_m^2 - 1)}{\xi_m^2} \cdot \xi^2 \cdot \left(1 - \frac{\xi^2}{2\xi_m^2}\right)}. \quad (43)$$

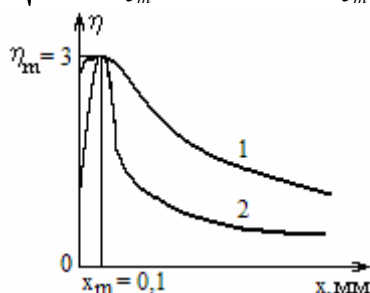


Рис. 2. Качественные распределения безразмерной напряженности электрического поля $\eta = E/E_0$ в зависимости от расстояния $\xi = x/h$ электрода в его окрестности: 1 – теоретическая; 2 – экспериментальная

В работе [7] исследовано распределение напряженности поля в 10%–15%-м растворе трансформаторного масла с бутиловым спиртом (или йодом) в однородном поле плоского конденсатора. Для частного случая данных ($2h = 6$ мм (толщина слоя); $\xi_m = 2,9/3$; $\eta_m = 3$) формула (43) примет вид

$$\eta(\xi) = \sqrt{1 + \frac{144}{8,41} \xi^2 \left(1 - \frac{9\xi^2}{16,82}\right)}.$$

График этой зависимости качественно представлен на рис. 2 (кривая 1). На том же рисунке приведена и экспериментальная кривая 2 [7]. Причем в формулах ξ отсчитывается от середины конденсатора, в то время как на рис. 2 отсчет x ведется от поверхности электрода. Согласие расчетных и опытных данных носит качественный характер. Расхождение между кривыми рис. 2, возможно, обусловлено спецификой примесной проводимости растворов, а может быть, и другими причинами.

Выводы.

1. Исследованы процессы электризации диэлектрических жидкостей на основе единого подхода путем аппроксимации одной из парциальных плотностей электрического тока отрезком ряда Тейлора, который позволил аналитически объяснить наиболее известные типы электризации, в том числе случай кривых $E(x)$ с боковыми экстремумами (двухгорбовые кривые).

2. Количественное несоответствие формулы (43) экспериментальным данным может быть следствием *недостаточной* точности (четвертого порядка) разложений функций в степенной ряд (следовало бы учесть следующие члены) и не говорит о недостоверности формулы или некорректности проведения опытов.

3. Более вероятной причиной расхождений между теорией и экспериментом представляется наличие в приэлектродном слое и толще жидкости двух *разных* механизмов зарядообразования, о чем свидетельствует пик, напоминающий излом, в точке экстремума экспериментальной кривой $E(x)$ (рис. 2, кривая 2), где указанная функция становится недифференцируемой; это и означает смену механизма зарядообразования при переходе через границу приэлектродного слоя и представляется целесообразным привлечение к теории электризации концепций пограничных слоев.

4. Представляются дальнейшие поиски механизмов и моделей объяснения биполярных приэлектродных структур в процессах электризации слабопроводящих жидких диэлектриков применительно к развитию электрогидродинамики и ее успешному использованию.

ЛИТЕРАТУРА

1. Остроумов Г.А. Взаимодействие электрических и гидродинамических полей. М.: Наука, 1979. 320 с.
2. Болога М.К., Гросу Ф.П., Кожухарь И.А. Электроконвекция и теплообмен. Кишинев: Штиинца, 1977. 320 с.
- 3 Grosu F. P., Bologa M. K. On bipolar space-charge structures in low conductive liquids in an external electrostatic field. *Surface Engineering and Applied Electrochemistry*. 2007, **43**(1), 36–39.
4. Grosu F.P., Bologa M.K., Bloschitsyn B.B., Stishkov Yu.K., Kozhevnikov I.V. Charge formation in liquid dielectrics under the influence of electrostatic field. *Surface Engineering and Applied Electrochemistry*. 2007, **43**(5), 318–335.
5. Мицкевич П.А., Казацкая Л.С. Исследование распределения потенциала в жидких диэлектриках методом эффекта Керра. *Электронная обработка материалов*. 1968, (2), 71–74.
6. Рычков Ю.М., Стишков Ю.К. Напряженность электрического поля и объемный заряд в технических „жидких диэлектриках”. *Коллоидный журнал*. 1978, **40**(6), 1204–1205.
7. Стишков Ю.К., Остапенко А.А. *Электрогидродинамические течения в жидких диэлектриках*. Л., 1989. 174 с.

Поступила 07.09.10

Summary

Due to the complexity of issues of electrification of weakly conducting dielectric liquids a simplified (alternative) approach is proposed. One of a partial electrical currents, the positive charges, is approximated by a third order Maclaurin series and the rest of the unknowns are expressed by the fourth-order polynomials, which cover the known distributions of the electric field in the electrification of liquid dielectrics under the influence of external electric fields. The different cases of electrification are explained. One of the most difficult cases, the one with the formation of a bipolar electrode structures is explained only qualitatively. The accepted model explaining the many cases of electrification, does not adequately explains the processes analyzed in this exceptional case. So further investigations are necessary and the theory of boundary layers may be promising.
