

Динамические вольт-амперные характеристики слабопроводящих жидкостей в сильнонеоднородных электрических полях

Ю. К. Стишков, В. А. Чирков, А. А. Ситников

НОЦ «Электрофизика», Физический факультет, Санкт-Петербургский государственный университет, ул. Ульяновская, 3, г. Санкт-Петербург, 198504, Россия, e-mail: stishkov@paloma.spbu.ru

Представлены результаты компьютерного моделирования процессов токопрохождения сквозь слабопроводящие жидкости при линейно изменяющемся напряжении. Расчёт выполнен на основе полной системы электрогидродинамических уравнений. Рассмотрены две модели зарядообразования – инжекция и объёмная диссоциация. Учтено усиление диссоциационного зарядообразования под действием внешнего электрического поля. Получены соответствующие динамические вольт-амперные характеристики и выявлены их характерные особенности при разных механизмах зарядообразования. Проведено качественное сопоставление результатов моделирования и экспериментальных данных.

Ключевые слова: компьютерное моделирование, ёмкостный ток, инжекция, диссоциация, ЭГД-течение.

УДК 532.5+537.571

ВВЕДЕНИЕ

За время исследования вольт-амперных характеристик (ВАХ) диэлектрических жидкостей накоплена большая статистика экспериментальных данных [1–3], а также проведено теоретическое исследование процессов зарядообразования и электрической проводимости, частично объясняющих полученные экспериментальные результаты (например, [4, 5]). При кажущейся простоте экспериментального исследования снятие ВАХ диэлектрических жидкостей сопряжено с рядом сложностей, таких как длительность переходных процессов, сильные флуктуации тока, связанные с нестабильностью ЭГД-течений, и прочее. Новый подход к измерению токовых характеристик, лишённый большинства подобных недостатков и имеющий дополнительные преимущества, был предложен в [1] и заключается в исследовании так называемых динамических вольт-амперных характеристик (ДВАХ). Суть такого эксперимента состоит в том, что к электродам прикладывается линейно изменяющееся напряжение (скорость изменения которого постоянна и известна) и записывается осциллограмма тока. Небольшой сложностью такого подхода является лишь то, что из экспериментальных осциллограмм приходится исключать ёмкостной ток, равный произведению ёмкости системы электродов на производную по времени от напряжения.

В настоящей работе приведены результаты компьютерного моделирования ЭГД-процессов в режиме линейно изменяющегося напряжения при двух скоростях модуляции напряжения: максимальная – 20 кВ/с, минимальная – 0,7 кВ/с.

Моделирование проведено на основе решения полной системы ЭГД-уравнений [1]. Для исследований выбрана система электродов с сильной неоднородностью распределения электрического поля – игла-плоскость. Характерный радиус закругления острия иглы – 0,1 мм, межэлектродное расстояние – 7 мм. Рассмотрены две модели образования заряда – инжекция заряда в непроводящую и слабопроводящую жидкости и объёмная диссоциация. Рабочая жидкость – трансформаторное масло со следующими свойствами: относительная диэлектрическая проницаемость $\epsilon = 2,2$, массовая плотность $\gamma = 870 \text{ кг/м}^3$, динамическая вязкость $\eta = 0,025 \text{ Па}\cdot\text{с}$ и подвижность ионов $b = 10^{-8} \text{ м}^2/(\text{В}\cdot\text{с})$.

МОДЕЛЬ ОБЪЁМНОГО ЗАРЯДООБРАЗОВАНИЯ

Компьютерное моделирование системы ЭГД-уравнений проводилось при помощи метода конечных элементов в программном пакете COMSOL Multiphysics. Сама методика компьютерного моделирования описана в работах [6–8], и поэтому здесь остановимся лишь на описании диссоциационно-рекомбинационного механизма зарядообразования [3, 9]. В этой модели объёмный источник зарядообразования $g(\vec{x}, t)$ может быть представлен в виде

$$g(\vec{x}, t) = \frac{\sigma_0^2}{\epsilon\epsilon_0(z_1eb_1 + z_2eb_2)} F - \frac{z_1eb_1 + z_2eb_2}{\epsilon\epsilon_0} n_1n_2, \quad (1)$$

где σ_0 – низковольтная проводимость жидкости; ϵ – относительная диэлектрическая проницаемость; ϵ_0 – диэлектрическая постоянная; z – ва-

лентность ионов; e – элементарный электрический заряд; b – подвижность ионов; F – относительное усиление диссоциации; n – концентрация ионов, индексы 1, 2 указывают на сорт ионов. Данная формула справедлива при малой степени диссоциации, когда можно считать, что концентрация примесных молекул практически не изменяется в результате диссоциации (что справедливо для слабопроводящих жидкостей, которые являются очень слабыми электролитами). Первое слагаемое описывает диссоциацию примесных молекул, а второе – рекомбинацию. При наличии сильного внешнего электрического поля интенсивность диссоциации экспоненциально возрастает [10]:

$$F(p) = \frac{(2\sqrt{1+4p^2} - 1)\exp(2(\sqrt{1+4p^2} - 1)) - 1}{8p^2}, \quad (2)$$

$$p = e/2k_B T \sqrt{eE/4\pi\epsilon\epsilon_0}, \quad (3)$$

где k_B – постоянная Больцмана; T – температура; E – напряжённость электрического поля. Такое усиление называется эффектом Вина. Функция $F(p)$ в нуле обращается в единицу и монотонно возрастает с увеличением аргумента, что соответствует повышению скорости диссоциации так называемых ионных пар, которые образуются при неполном распаде молекул примесей на ионы, а также при рекомбинации ионов. В неполярных жидкостях (при $\epsilon \approx 2$) в сравнительно небольших полях около 10^6 В/м диссоциация усиливается почти в два раза, а в более сильных (около 10^7 В/м) – почти в 40 раз.

В более сложной модели Онзагера [11] относительное увеличение интенсивности диссоциации выражается через функцию Бесселя:

$$F^{\text{Onz}}(p) = \frac{I_1(4p)}{2p}, \quad (4)$$

где I_1 – модифицированная функция Бесселя первого порядка. Оба представления (2) и (4) имеют качественно схожий вид, и их количественные различия начинают проявляться лишь в области очень сильных полей $E \geq 10^7$ В/м. В данной работе используется представление (2).

Для вычисления осциллограммы тока, протекающего в системе, по полученным распределениям искомых величин используется теорема Рамо-Шокли [12–14], согласно которой значение мгновенного полного тока I определяется по следующей формуле:

$$I = \int_V (\bar{f}_E, \bar{j}) d\bar{x} + C \frac{\partial \varphi}{\partial t}, \quad (5)$$

где \bar{j} – плотность тока; \bar{f}_E – взвешенное значение напряжённости электрического поля; \bar{x} – про-

странственная координата; C – ёмкость системы электродов; φ – электрический потенциал; t – время; интегрирование проводится по всему объёму кюветы V . Второе слагаемое в уравнении (5) соответствует ёмкостному току, протекающему через электроды при приложении к ним изменяющегося напряжения. Пример использования данной формулы для расчёта осциллограмм тока, соответствующих переходному процессу формирования ЭГД-течений при импульсном включении напряжения, можно найти в [8].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Рассмотрим результаты компьютерного моделирования. Типовые распределения основных искомых величин (объёмной плотности заряда, плотности тока, скорости жидкости и т.д.) можно найти в [6, 7], поэтому перейдём непосредственно к токовым характеристикам. Начнём с инжекционной модели зарядообразования в жидкости без низковольтной проводимости, которая является наиболее простой, но в то же время успешно применяется для описания специфики работы многих ЭГД-устройств (например, [15]). На рис. 1а представлены рассчитанные ДВАХ суммарного и ионного токов при скорости модуляции напряжения 20 кВ/с. Здесь под суммарным током подразумевается сумма ионного и ёмкостного токов. Значение ёмкостного тока при такой высокой скорости модуляции напряжения составляет около 10 нА, что априори обуславливает различия между прямой и обратной ветвями ДВАХ (для суммарного тока). Однако после вычета ёмкостного тока ДВАХ (для ионного тока) всё равно сохраняет гистерезисный характер, связанный с тем, что на этапе увеличения напряжения заряд вводится в жидкость, а на этапе снижения напряжения заряд выводится из нее. Появление объёмного заряда приводит к относительному изменению напряжённости электрического поля у поверхности игольчатого электрода. Соответствующая зависимость относительного изменения напряжённости электрического поля на заострении иглы от напряжения представлена на рис. 2б (кривая 2). Причём на этапе роста напряжения влияние объёмного заряда на напряжённость электрического поля не превышает 25%, а на этапе снижения напряжения – сначала доходит до 40%, а затем достигает 100%. Можно сказать, что зависимость локальной напряжённости электрического поля от напряжения также имеет гистерезис.

Сравним ДВАХ, полученные при разной скорости модуляции напряжения (рис. 1б). По мере увеличения периода (уменьшения скорости) модуляции напряжения на ДВАХ исчезает гистерезис, и они начинают накладываться друг на дру-

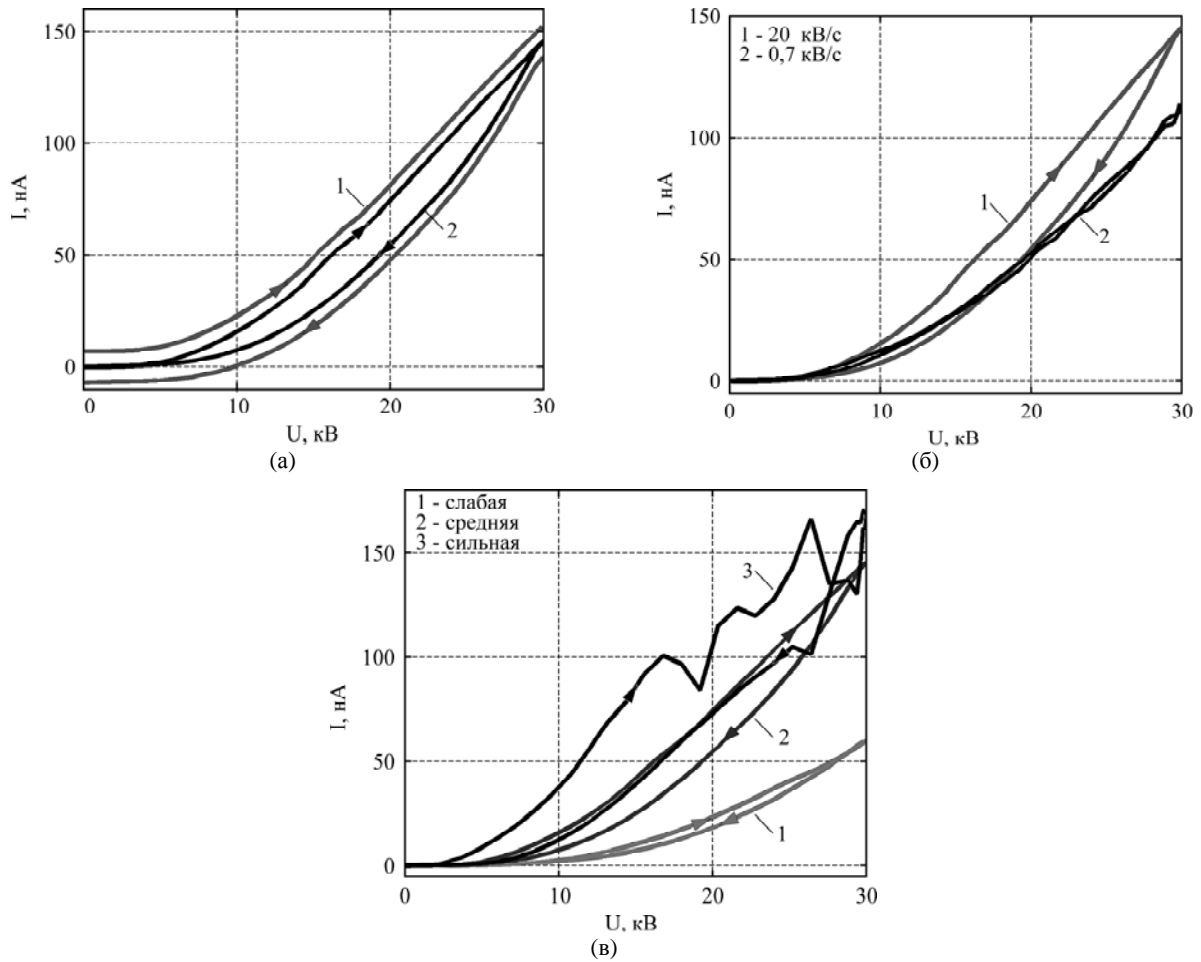


Рис. 1. ДВАХ при инжекционном механизме зарядообразования (а) с учётом ёмкостного тока (1) и без него (2), а также полученные при разной скорости модуляции (20 и 0,7 кВ/с) напряжения (б) и разной силе инжекции (в) соответственно.

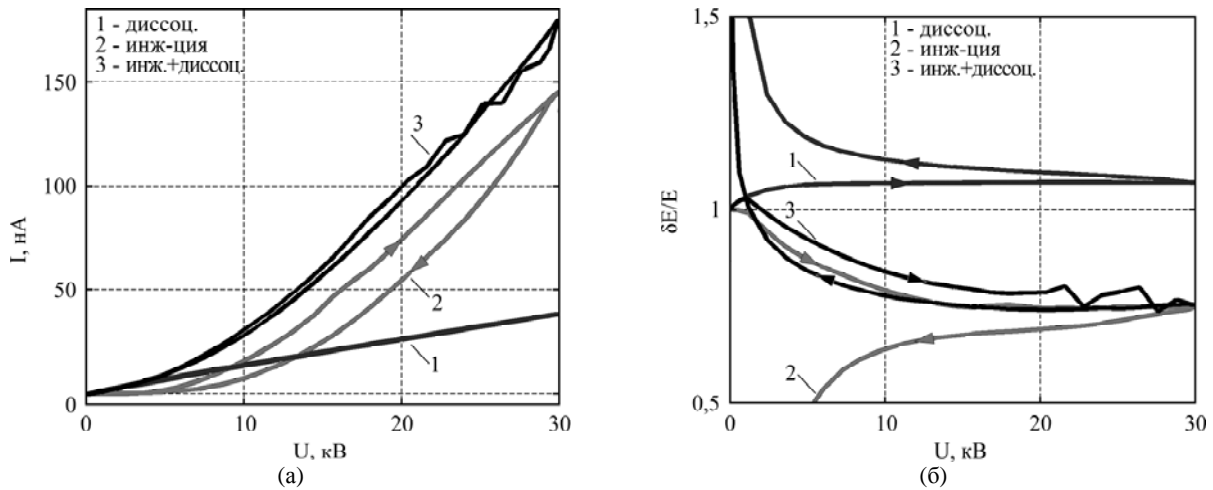


Рис. 2. ДВАХ в диссоциационной (1), инжекционной (2) и в объединённой (3) моделях (а); зависимость относительного изменения напряжённости электрического поля на заострении иглы от напряжения в трёх моделях (б).

га. Так, в рассматриваемой системе при скорости модуляции 2 кВ/с ДВАХ практически переходит в стационарную ВАХ. Это происходит вследствие того, что при больших периодах модуляции объёмный заряд успевает эффективно выводиться из объёма, и напряжённость электрического поля на прямом и обратном участках практически совпадает. При увеличении силы инжекции на ДВАХ появляются сильные флуктуации, связанные с нестабильностями ЭГД-течений

(рис. 1в). Соответствующие нестабильности обуславливаются боковыми выбросами заряда из центральной струи течения [6]. Несмотря на увеличение силы инжекции, существенного роста полного тока не происходит – так, например, при различии тока примерно в два раза при напряжении около 10 кВ при максимальном напряжении токи отличаются всего на 10%. Это связано с тем, что инжектированный заряд сильно влияет на напряжённость электрического поля и тем

самым ограничивает интенсивность зарядообразования на электроде.

Рассмотрим ДВАХ, которая получается при инжекции в слабопроводящую жидкость, то есть в модели, учитывающей диссоциационное зарядообразование. На рис. 2а представлены соответствующие результаты только при диссоциационном зарядообразовании (без инжекции) и при инжекции заряда в непроводящую и слабопроводящую жидкости. Для сравнения выбран случай, когда токи проводимости и инжекции имеют один порядок величины. В модели без инжекции гистерезис отсутствует, и полученная ДВАХ практически линейна. На начальном участке (до 5 кВ) с ней совпадает ДВАХ, полученная в объединённой модели (с диссоциацией и инжекцией). Однако учёт инжекции приводит к возникновению участка «высоковольтной» нелинейности, связанной с активацией инжекционного зарядообразования и появления конвективного переноса заряда. Можно сказать, что ДВАХ в объединённой модели – это практически сумма двух ДВАХ, полученных в моделях, где каждый механизм зарядообразования рассматривался по отдельности, однако у неё существенно ослаблен эффект гистерезиса, который получался в чисто инжекционной модели.

Как было показано выше, гистерезис ДВАХ в модели с инжекционным зарядообразованием в непроводящую жидкость определяется гистерезисом локальной напряжённости электрического поля на инжектирующем электроде, который приводит к существенным различиям тока инжекции в режимах увеличения и уменьшения напряжения. Из рис. 2б видно, что в объединённой модели напряжённость электрического поля при повышении и понижении напряжения различается существенно меньше, чем в чисто инжекционной модели. А в модели без инжекции напряжённость электрического поля на обратной ветви даже больше, чем на прямой, что связано с особенностями структуры объёмного заряда в приэлектродных областях [16, 17].

Таким образом, при наличии низковольтной проводимости жидкости облегчается нейтрализация избыточного инжектированного заряда (она происходит и быстрее, и эффективнее) и уменьшаются как сама степень экранировки электрического поля, так и различия в её значениях при увеличении и уменьшении напряжения. Соответственно инжекционный ток на прямой и обратной ветвях имеет меньшее различие в модели, учитывающей проводимость жидкости.

Рассмотрим ДВАХ, полученную в модели без инжекции, но с учётом зависимости степени диссоциации от локальной напряжённости электрического поля, то есть с учётом эффекта Вина

(рис. 3). В отличие от модели с инжекцией в проводящую жидкость данная ДВАХ линейна в более широком диапазоне напряжений – примерно до 15 кВ, когда максимальная напряжённость электрического поля на кончике иглы достигает значений порядка 10^8 В/м. При дальнейшем увеличении напряжения начинается очень резкий рост тока, и ток при максимальном напряжении 10-кратно превышает то значение, которое получается в модели с постоянной диссоциацией. При этом, несмотря на сравнительно большие значения токов, на данной ДВАХ практически нет гистерезиса.

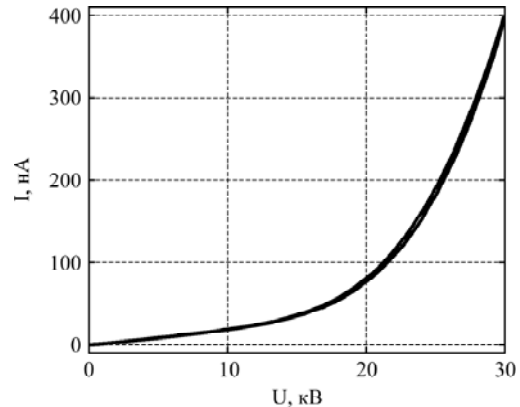


Рис. 3. ДВАХ в модели с зависимостью диссоциации от локальной напряжённости электрического поля.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ДИНАМИЧЕСКИЕ ВОЛЬТ-АМПЕРНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ

Проведём качественное сопоставление рассчитанных и экспериментальных ДВАХ. Чтобы уменьшить влияние низковольтной проводимости, которая, как показано, сглаживает все нелинейные эффекты и ослабляет гистерезис, экспериментальное исследование проводилось для чистой диэлектрической жидкости – вазелинового масла без и с добавлением в него специальных электронно-акцепторных добавок. Использовалась система электродов с геометрией, близкой к той, что реализована в компьютерной модели, но только с немного меньшим радиусом закругления иглы – 20 мкм. Подробное описание экспериментальной установки и дополнительные данные по экспериментальным ДВАХ (полученным для ещё более острой иглы) можно найти в [18].

Экспериментальные ДВАХ (с уже вычтенным ёмкостным током в отличие от данных из [18]) представлены на рис. 4. Что касается жидкости без примесей, то в диапазоне напряжений от 0 до 10 кВ уровень тока проводимости очень низок, а его зависимость от напряжения линейна. В послепороговой области регистрируется очень крутой рост тока, подобный тому, который получался в модели, учитывающей зависимость интенсивности диссоциации от напряжённости элект-

трического поля. Причём так же, как и в моделировании, на полученной ДВАХ практически отсутствует гистерезис.

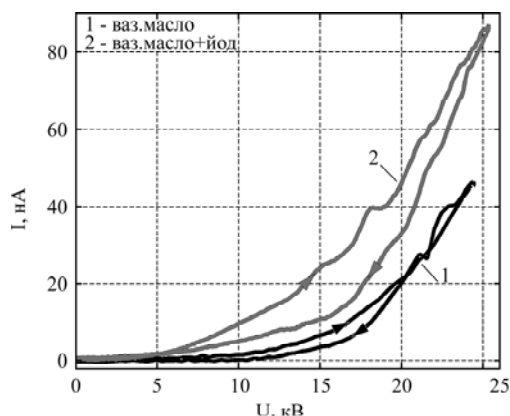


Рис. 4. Экспериментальные динамические вольт-амперные характеристики, снятые в системе игла-плоскость при отсутствии (1) и наличии (2) в рабочей жидкости электронно-акцепторных добавок.

Во втором случае в чистое вазелиновое масло была введена электронно-акцепторная добавка – кристаллический йод с концентрацией 10^{-4} г/см³. В результате на ДВАХ появились отличия. Так, нелинейный рост тока теперь стал начинаться при меньшем напряжении, между значениями тока на прямой и обратной ветвях ДВАХ появились заметные различия, и максимальное значение тока увеличилось. Такое изменение вида ДВАХ связано с тем, что добавление йода привело к заметному усилению инжекционного зарядообразования, а также повысило низковольтную проводимость жидкости. И можно предположить, что данному случаю соответствует модель инъекции заряда в очень слабопроводящую жидкость.

ВЫВОДЫ

В представленной работе впервые при помощи численного решения полной системы ЭГД уравнений получены ДВАХ слабопроводящей жидкости в системе электродов с сильнонеоднородным распределением электрического поля. Результаты моделирования позволили проследить особенности ДВАХ и сопоставить их с механизмами введения и транспортировки объёмного заряда через жидкость. Результаты численного расчёта показали, что гистерезис ДВАХ, полученный ранее при экспериментальных исследованиях, определяется гистерезисом при электродной напряжённости электрического поля, в результате которого изменяется интенсивность поверхностного зарядообразования. В зависимости от доминирующего механизма зарядообразования ДВАХ обладают различными характерными особенностями, анализируя которые можно выявить особенности зарядообразования в реальных системах.

ЛИТЕРАТУРА

1. Стишков Ю.К., Остапенко А.А. *Электрогидродинамические течения в жидких диэлектриках*. Л.: Издательство ЛГУ, 1989. 174 с.
2. Daaboul M., Louste Ch. and Romat H. PIV Measurements on Charged Plumes – Influence of SiO₂ Seeding Particles on the Electrical Behavior. *IEEE Trans Dielectr Electr Insul.* 2009. **16**(2), 335–342.
3. Жакин А.И. Ионная электропроводность и комплексообразование в жидких диэлектриках. *УФН*. 2003, **173**(1), 51–68.
4. Denat A. Conduction and Breakdown Initiation in Dielectric Liquids. *Proc. 17th Intern. Conf. on Dielectric Liquids, ICDL'11*. Trondheim (Norway), 2011.
5. Гросу Ф.П., Болога М.К., Блощицын В.В., Стишков Ю.К., Кожевников И.В. Зарядообразование в жидких диэлектриках под воздействием электростатического поля. *ЭОМ*. 2007, (5), 16–38.
6. Стишков Ю.К., Чирков В.А. Формирование электрогидродинамических течений в сильнонеоднородных электрических полях при двух механизмах зарядообразования. *Журнал технической физики*. 2012, **82**(1), 3–13.
7. Stishkov Yu., Chirkov V. Dependence of the Electrohydrodynamic Flows Structure in Very Non-uniform Electric Field on the Charge Formation Mechanism. *Proc. 17th Intern. Conf. on Dielectric Liquids, ICDL'11*. Trondheim (Norway), 2011. P. 1–4.
8. Стишков Ю.К., Чирков В.А. Ампер-секундные характеристики переходного процесса установления ЭГД-течений при разных механизмах зарядообразования. *Сб. докл. X Междунар. науч. конф. «Современные проблемы электрофизики и электрогидродинамики жидкостей»*. Санкт-Петербург, 2012. 82–85.
9. Apfelbaum M.S., Apfelbaum E.M. One Model of Electric Conduction and Electric Field Distributions in a Liquid Insulator. *J Electrostat.* 2001, **50**(2), 129–142.
10. Castellanos A. *Electrohydrodynamics*. Wien: Springer-Verla, 1998. 363 p.
11. Onsager L. Deviations from Ohm's Law in Weak Electrolytes. *J Chem Phys.* 1934, **2**, 599–615.
12. Ramo S. Currents Induced by Electron Motion. *Proc IRE*. 1939, **27**(9), 584–585.
13. Shockley A. Currents to Conductors Induced by a Moving Point Charge. *J Appl Phys.* 1938, **9**, 635–636.
14. Hamel L.-A., Julien M. Generalized Demonstration of Ramo's theorem with Space Charge and Polarization Effects. *Nucl Instrum Methods.* 2008, **597**(2–3), 207–211.
15. Shrimpton J. *Charge Injection Systems*. Berlin: Springer-Verlag, 2009. 196 p.
16. Гросу Ф.П., Болога М.К. О биполярных структурах объёмного заряда в слабопроводящей диэлектрической жидкости во внешнем электростатическом поле. *ЭОМ*. 2007, **43**(1), 47–51.

17. Гросу Ф.П., Болога М.К. Структура объемного заряда в слабопроводящей жидкости в плоском конденсаторе. *ЭОМ*. 2007, **43**(4), 28–33.
18. Stishkov Yu.K., Krasil'nikov S.Yu., Chirkov V.A. Investigation of Electrohydrodynamic Flows in Superstrong Electric Fields. *Surf Eng Appl Electrochem*. 2012, **48**(4), 312–317.

Поступила 15.08.12

После доработки 09.11.12

Summary

The paper presents the results of computer simulation of the current flow through weakly conducting liquids at linear varying voltage. The simulation is carried out on

the base of a complete set of Electrohydrodynamic (EHD) equations. Two cases are considered: when a charge is formed in the bulk due to impurity molecule dissociation and when it is formed on the electrode surface due to the charge injection. The raise of the dissociation rate under the influence of an electric field is taken into account. Corresponding dynamic current-voltage characteristics are calculated and their specific features are revealed for every model of charge formation. It is shown the hysteresis of current-voltage characteristic is conditioned by the hysteresis of the electric field strength in the near-electrode area. Qualitative comparison of simulation data and experimental ones is carried out.

Keywords: computer simulation, capacitive current, injection, dissociation, EHD flow.