А. И. Жакин, П. А. Белов

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего профессионального образования "Юго-Западный государственный университет", ул. 50 лет Октября, 94, г. Курск, 305040, Российская Федерация, е-mail: <u>zhakin@mail.ru</u>

Приводятся экспериментальные данные по формам и электрическим характеристикам заряженных менисков воды, этилового спирта, глицерина и касторового масла в зависимости от прикладываемого внешнего высоковольтного напряжения. Показано, что воздействие поля на мениск определяется не только проводимостью жидкости, ее вязкостью и поверхностным натяжением, но и распределением поля и объемного заряда в воздухе.

УДК 537.58

# ВВЕДЕНИЕ

Электродиспергирование лежит в основе принципа действия разнообразных прецизионных научных приборов и устройств, является неотъемлемой частью многих технологических процессов: получение порошков тугоплавких металлов [1], распыление ядохимикатов и лакокрасочных материалов [2-4], сжигание горючего в автомобильных и реактивных двигателях [5-7], электрокаплеструйной печати [8] и др. Помимо технического применения, электродиспегрование представляет большой интерес как инструмент для научного исследования, например разработка новых средств масс-спектрометрического анализа нелетучих и термически нестабильных жидкостей [9]. Способность электроспрея неоднократно генерировать малые и равномерные объемы жидкости превращает его в один из важных инструментов нанотехнологии, например получение микрокапсул и нанотрубок (см. обзор [10] и ссылки там).

В данной работе излагаются экспериментальные результаты по воздействию электрического поля на вертикально ориентированные мениски, расположенные на конце капилляра диаметром 1 мм, при плавном изменении напряжения от нуля до момента начала диспергирования жидкости. Исследуемые жидкости выбирались так, чтобы охватить широкий диапазон проводимостей σ, диэлектрических восприимчивостей ε, вязкостей η, поверхностных натяжений α, а также в целях безопасности требованием нетоксичности. Характеристики исследуемых жидкостей представлены в таблице, в которой последний столбец определяет время релаксации заряда  $\tau_e = \epsilon \epsilon_0 / \sigma$ . Выводы нашего анализа не только дополняют результаты предыдущих исследований [11–14], но и во многом изменяют сложившиеся представления (например, [3]), их мы укажем по ходу изложения результатов исследования.

Характеристики исследуемых жидкостей

Жид-	ρ,	α,	<b>η,</b> Π3	ε	σ,	τ <sub>e</sub> ,
кость	г/см	дн/см	ν		См/м	сек
Водопро- водная вода	1	72	0,01	81	10-5	7.10-5
Глицерин	1,26	59,4	14	56	10 <sup>-5</sup>	$5 \cdot 10^{-5}$
Спирт этиловый	0,79	28,5	0,012	28	10-6	$2 \cdot 10^{-3}$
Касто- ровое масло	0,9	36	10	2,1	10 <sup>-10</sup>	0,19

# 1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Данные режимы под действием электрического поля исследовались на установке, представленной на рис. 1. В качестве катода выступал тонкостенный медный капилляр (с жидкостью) 2 диаметром d = 1 мм, а анодом служило медное кольцо 1 с диаметром D = 13,5 мм, изготовленное из проволоки диаметром 2,3 мм. Расстояние между верхним краем капилляра и плоскостью кольца Н составляло 15 мм. Подъём капли в верхней части капилляра осуществлялся под действием малого изменения давления воздуха колбы 11, производимого за счёт нагрева регулируемым тепловым потоком осветителя 12. Электрическое поле между капилляром и кольцом создавалось высоковольтным источником 5, а разрядный ток контролировался цифровым микроамперметром 6. Для защиты от пробоя микроамперметр подключался к ограничительному сопротивлению 7 и искровому разряднику 8. Видеоизображения струй производились высокоскоростной цифровой камерой 10 (скорость съемки – до 1000 кадров в секунду) с использованием осветителя 4 и увеличительной оптической системы 9. Покадровая развертка осуществлялась с помощью программы Media Player Classic (устанавливается программой klmcodec505.exe), имеющей встроенные опции покадрового изображения, захват кадра и таймер.



Рис. 1. Установка по исследованию электродиспергирования жидкостей.

# 2. ВОДНЫЕ МЕНИСКИ

#### 2.1. Отрицательная полярность мениска

Исследования показали, что в зависимости от прикладываемого напряжения можно выделить следующие закономерности. При  $U < U_1$  мениск вытягивается вдоль направления электрического поля (рис. 2а,б). Далее при  $U_1 < U < U_2$  наблюдаются низкочастотные (порядка нескольких сот герц) пульсации микроконуса, сопровождающиеся коронным свечением (рис. 2в). С ростом поля частота пульсаций v возрастает, например, при U = 11 кВ имеем v = 250 Гц, а при U = 13 кВ частота v = 340 Гц (рис. 3). С ростом напряженности поля микроконус вытягивается в тонкую струйку, от которой в зависимости от размера мениска могут отрываться как одиночные микрокапли, так и микрокапли за счет распада микроструйки (рис. 4а). При распадах микроструек ближайшие к мениску капли иногда возвращаются на мениск, что обусловливается их перезарядкой. Эти результаты показывают, что поверхность мениска окружена облаком зарядов противоположного знака его полярности. Наконец, при  $U_3 < U < U_4$  отрываются макрокапли либо струйки (рис. 4б) размером порядка радиуса капилляра. При  $U > U_4$  наблюдается пробой.

С уменьшением радиуса капилляра частота выбросов макрокапель резко возрастает и достигает значений до  $4 \cdot 10^4$  капель/с для водных растворов при диаметрах капилляров 60–300 мкм, и именно в этом режиме диспергирования работают электрокаплеструйные принтеры [8]. При этом отрываемые капли могут распадаться за счет развития ЭГД неустойчивости. Данные наблюдения существенно отличаются от сложившихся представлений [3], которые основаны на статическом анализе сил, не учитывающих процессы неустойчивости.

# 2.2. Положительная полярность мениска

При мгновенном включении высокого напряжения вначале происходят пульсации мениска как целого, то есть в отличие от отрицательной полярности пульсирующий микроконус не образуется (рис. 5а). При повышении напряжения или по истечении долей секунды (при U = 10 кB примерно  $10^{-2} \text{ с}$ ) пульсации сопровождаются выбросом микроструек, которые вначале не распадаются на микрокапли (рис. 5б), а затем выбросы микроструек сопровождаются их распадом на микрокапли (рис. 5в). В силу того, что мениск изменяет свою форму (теряет симметричность), выброс микроструек происходит по разным направлениям (рис. 5б,в). Отличие в поведении мениска при разных полярностях можно объяснить разными ионизационными процессами на границе вода-воздух: при отрицательной полярности поверхность взаимодействует с положительными ионами, при положительной - с электронами и отрицательными ионами. Обратим внимание на то, что при отрицательном мениске выбросы микроструек начинаются при более высоком напряжении  $U \sim 15 \text{ кB}$  (рис. 4), тогда как при положительном мениске при U ~ 10 кВ, то есть в этом случае ионизационные процессы на поверхности мениска идут более интенсивно. Этот эффект можно объяснить тем, что при положительном мениске ионизация поверхности происходит за счет ее бомбардировки электронами, обладающими высокой кинетической энергией. Этот вывод подтверждается тем, что переход по напряжению от слабых пульсаций к выбросам микроструек происходит скачкообразно с полной аналогией развития коронного разряда.

## 3. ГЛИЦЕРИНОВЫЕ МЕНИСКИ

Роль вязкости жидкости при быстрой релаксации зарядов можно проследить на примере глицериновых менисков. Так же, как и в случае водных менисков, наблюдаются пульсации микроконуса (рис. ба). Однако в этом случае пульсации сопровождаются зажиганием коронного разряда (рис. бб). Частота пульсаций примерно на порядок меньше, чем в случае водных менисков.



**Рис. 2.** (а) – вытягивание мениска воды вдоль поля при  $U < U_1$ ; (б) – начало колебаний микроконуса при  $U_1 = 10$  кВ/см, частота которых возрастает с ростом напряжения с последующим зажиганием коронного; (в) – зажигание коронного разряда на кончике микроконуса; (г) – последовательные кадры колебания микроконуса, частота – 420 кадров/с.



Рис. 3. Зависимость частоты пульсаций микроконуса от прикладываемого напряжения в случае водных менисков.



Рис. 4. Режимы диспергирования вертикально ориентированного мениска в системе водопроводная вода-воздух: (а) – последовательные кадры отрыва микроструи с последующим ее распадом на микрокапли (*U* ~ 15 кВ, частота – 1000 кадров/с); (б) – отрыв макрокапли (*U* ≥ 17 кВ).



**Рис. 5.** Положительный мениск воды; последовательные кадры с интервалом  $10^3$  с: (а) – пульсации при U = 9 кВ; (б) – выброс микроструи без распада на капли; (в) – выброс микроструи с последующим распадом на капли, в обоих случаях при U = 10 кВ.



**Рис. 6.** Пульсации глицеринового микроконуса без зажигания (а) и с зажиганием (б) коронного разряда; (а) – кадры сняты с интервалом  $\Delta t = 0,02$  с, U = 10 кВ; (б) –  $\Delta t = 0,01$  с, U = 13 кВ.



**Рис.** 7. Движение микропузырей как от острия конуса Тейлора (а), так и к острию (б); кадры сняты с интервалом  $\Delta t = 0.02$  с при U = 10 кВ.



**Рис. 8**. Последовательные кадры формирования конуса Тейлора мениска этилового спирта; кадры сняты с интервалом  $\Delta t = 10^{-3}$  с при U = 10 кВ.



**Рис.** 9. (а–г) – формирование выброса плазменной струи,  $\Delta t = 10^{-3}$  с, U = 12 кВ; (д) – полиструйное диспергирование, U = 15 кВ.



**Рис.** 10. Положительный спиртовой мениск: (a) – последовательные кадры с интервалом  $\Delta t = 8 \cdot 10^{-3}$  с при U = 8 кB; (б) – выбросы плазменных струй, которые распадаются на плазменные капли,  $\Delta t = 3*10^{-3}$  с, U = 11 кB.



**Рис. 11**. Пульсации микроконуса касторового масла; кадры сняты с интервалом  $\Delta t = 0,02$  с, U = 10 кВ.



**Рис. 12**. Диспергирование касторового масла в виде макрокапель: (а–е) – последовательные кадры  $\Delta t = 0,02$  с, U = 14 кB; (ж) – распыление микроструйки при U = 15 кB.

Введение микропузырей в глицерин позволило установить, что при пульсациях микроконуса происходят своеобразные течения внутри мениска. При этом часть пузырьков движется от вершины в глубь жидкости, вдоль оси симметрии конуса Тейлора (рис. 7а), а пузырьки, находящиеся вблизи поверхности, – к вершине конуса Тейлора (рис. 7б). Эти данные показывают, что внутри мениска имеет место вихревое течение, линии тока которого схематично показаны на рис. 7б штриховыми линиями.

# 4. МЕНИСКИ ЭТИЛОВОГО СПИРТА

#### 4.1. Отрицательная полярность мениска

В экспериментах использовался 96% раствор медицинского спирта, который, как и водные растворы, относится к жидкостям с быстрой релаксацией зарядов (см. таблицу). Отличие заключается в том, что у спирта коэффициент поверхностного натяжений значительно меньше, чем у воды (примерно в 2,5 раза). Поэтому эти эксперименты позволяют проследить влияние поверхностного натяжения на истечение заряженных струй с быстрой релаксацией зарядов.

Исследования выявили следующие закономерности.

1. Формирование микроконуса ( $U \sim 10$  кВ) сопровождается зажиганием коронного разряда (рис. 8). Этот эффект ожидаем, так как при малых поверхностных натяжениях угол заострения микроконуса увеличивается, что влечет усиление напряженности поля и, как следствие, зажигание короны.

2. С повышением напряженности поля  $(U \sim 12 \text{ kB})$  из кончика микроконуса вырывается микроструйка, кончик которой распыляется на микрокапли в виде конуса (рис. 9а–в). Съемка в инфракрасном спектре показала, что микроструйка и малые капли излучают (рис. 9г), что

может свидетельствовать о том, что это плазменные образования.

3. В достаточно сильных полях ( $U \sim 15$  кВ) формируется полиструйное распыление жидкости (рис. 9д). Количество микроструек, в зависимости от напряженности поля, изменяется от одной и более, а сами микроструйки перемещаются вдоль поверхности, так что этот режим является нестационарным.

### 4.2. Положительная полярность мениска

При положительной полярности наблюдаются колебания мениска как целого, сопровождаемые зажиганием короны. При этом, как и при водных менисках (рис. 5а), напряжения электрического поля значительно меньше, чем при отрицательном мениске (рис. 10а). С повышением напряжения до U = 10 кВ происходит выброс плазменных микроструек, которые, как правило, распадаются на микрокапли. Механизм подобного поведения мениска, на наш взгляд, аналогичен тому, который имеет место при водных менисках. В силу того, что у этилового спирта поверхностное натяжение значительно меньше, чем у воды (см. таблицу), возникают отличия в поведении микроструек, в частности они практически всегда распадаются на микрокапли. Обратим внимание на то, что поведение как водных, так и спиртовых менисков существенно определяется ионизационными процессами на поверхности жидкость-воздух.

# 5. МЕНИСКИ КАСТОРОВОГО МАСЛА

Касторовое масло является жидкостью с малым временем релаксации зарядов (см. таблицу) и поверхностным натяжением в 2 раза меньшим, чем у воды.

Эксперименты показали, что при  $U \sim 10$  кВ образуется пульсирующий микроконус на вершине конуса Тейлора (рис. 11), частота пульсаций которого приблизительно совпадает с частотой V глицеринового микроконуса, что обусловливается тем, что они сильно вязкие жидкости (см. таблицу). Однако, в отличие от глицерина, размеры микроконуса значительно меньше. Этот эффект можно объяснить малой проводимостью касторового масла, что влечет уменьшение поверхностной кулоновской силы, формирующей микроконус.

С дальнейшим увеличением напряжения  $(U \sim 14 \text{ kB})$  из микроконуса вырывается микроструйка, которая делится пополам, так что верхняя часть 1 в виде капли отрывается от струи (рис. 12г), а вторая часть 2 под действием поверхностного натяжения возвращается в исходное состояние (рис. 12е). Наконец, при высоком напряжении ( $U \ge 15$  кВ) происходит распыление жидкости на микрокапли (рис. 12ж).

## ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. В жидкостях с быстрой релаксацией зарядов (вода, этиловый спирт и глицерин) обнаружены существенные различия в динамике менисков, обусловленные различными значениями коэффициентов вязкости и поверхностного натяжения.

2. В воде, обладающей высоким поверхностным натяжением, на вершине конуса Тейлора образуется устойчивый пульсирующий микроконус, частота пульсаций которого увеличивается с ростом поля (рис. 3) в диапазоне полей  $U_1 \le U \le U_2$  ( $U_1 \sim 10$  кВ,  $U_1 \sim 13$  кВ).

3. С ростом поля микроконус в воде трансформируется в микроструйку, которая неустойчива и распадается на микрокапли (рис. 4а).

4. В сильных полях от мениска отрываются макрокапли (рис. 4б).

5. По динамике микрокапель воды обнаружено, что воздушная область вблизи водного мениска заряжена, причем вблизи поверхности мениска образуются гомозаряды, а вдали – гетерозаряды (рис. 4а).

6. В глицериновом мениске на вершине конуса Тейлора образуется микроконус, частота колебаний которого примерно на порядок меньше, чем частота пульсаций водного мениска, причем в диапазоне пульсаций  $U_1 \le U \le U_2$ , как правило, наблюдается зажигание коронного разряда (рис. 5б).

7. В глицериновом мениске обнаружены вихревые течения (рис. 6).

8. Колебания спиртовых микроконусов, образующихся в вершине конуса Тейлора, как правило, сопровождаются коронным свечением (рис. 7).

9. Диспергирование спиртовых менисков, обладающих малым поверхностным натяжением, сопровождается ионизацией микроструек и микрокапель (рис. 8).

10. В сильных полях в спиртовом мениске наблюдается полиструйное распыление на микрокапли (рис. 9д).

11. На примере воды и этилового спирта обнаружено влияние полярности менисков на их поведение. Это свидетельствует о том, что динамика менисков неразрывно связана с процессами ионизации на границе жидкость-газ. В частности, при положительном мениске ионизационные процессы идут более интенсивно, что способствует более интенсивному диспергированию жидкости по сравнению с отрицательным мениском.

12. Мениски касторового масла, обладающего малым временем релаксации зарядов, имеют форму конусов Тейлора. Их кончики имеют форму пульсирующих микроконусов, размеры последних значительно меньше, чем в воде и глицерине. Частота пульсаций примерно такая же, как и в глицерине.

13. При малом времени релаксации зарядов наблюдается струйное истечение с кончика конуса Тейлора (рис. 12а–е), а при больших полях – моноструйное распыление на микрокапли (рис. 12ж).

14. Проведенные исследования показывают, что поведение заряженных менисков не укладывается в простейшие модели [2, 3, 7, 10–13], основанные на упрощенных моделях взаимодействия заряженных поверхностей с электрическим полем (см., например, [14–16]), и требует более детального анализа в рамках, например моделей [17]. В частности, использовать уравнение баланса поверхностных зарядов в виде

$$\frac{\partial n_{si}}{\partial t} + \operatorname{div}_{s} (\mathbf{i}_{si}^{*} + n_{si}\mathbf{V}_{t}) - 2Hn_{si}\mathbf{V}_{n} = -[\mathbf{i}_{in}^{*}] + \xi_{si},$$
  
$$\mathbf{i}_{i}^{*} = -D_{si}\nabla_{s}n_{si} + (\operatorname{sign} e_{i})b_{si}n_{si}\mathbf{E}_{t},$$

где n<sub>si</sub> – поверхностная концентрация зарядов *i*-го сорта;  $i_{si}^{*}$ ,  $i_{i}^{*}$  – миграционные поверхностный и объемный потоки;  $\xi_{si}$  – источник поверхностной генерации зарядов; V<sub>t</sub> – тангенциальная компонента скорости на поверхности; Н - средняя кривизна поверхности; V<sub>n</sub>, i<sub>in</sub> – нормальные компоненты векторов  $V, i_i; D_{si}, b_{si}$  – поверхностные коэффициенты диффузии и подвижности;  $E_t$  – тангенциальная компонента поля;  $\nabla_s$  – поверхностный градиент. Суммарный поверхностный заряд при этом выражается как  $q_s = \sum_i e_i n_{si}$ , где *e<sub>i</sub>* – заряд *i*-го компонента, а суммирование происходит по всем компонентам. На этом пути можно провести согласование гидродинамических процессов на поверхности мениска с ионизационными процессами в газе и на поверхности раздела жидкость-газ.

Работа выполнена в рамках реализации ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2013 годы (ГК П913).

# ЛИТЕРАТУРА

- Габович М.Д. Жидкометаллические источники ионов (обзор). УФН. 1983, 140(1), 137–151.
- Герценштейн Я., Мусабеков П.М., Рудницкий А.Я., Уразов Ш.Н. Неустойчивость и распад наэлектризованных капиллярных струй. ДАН СССР. 1989, **306**(5), 1073–1077.
- Верещагин И.П. и др. Основы электрогазодинамики дисперсных систем. М.: Энергия, 1974. 480 с.

- 4. Коженков В.И., Фукс Н.А. Электрогидродинамическое распыление жидкости (обзор). *Vcnexu xuмии*. 1976, **45**(12), 2274–2284.
- Петров Г.И., Калинин Т.Д. Применение метода малых колебаний к исследованию распада струй топлива в воздухе. *Tex. записки МАП*. 1947, 4, 15–23.
- Питерсон Р. Характеристики простого генератора капель с большим числом Рейндольса для исследования горения. Приборы для научных исследований. 1988, (6), 146-153.
- Аметистов Е.В., Блаженков В.В., Городов А.К., Дмитриев А.С., Клименко А.В. Монодиспергирование вещества: принципы и применение. М.: Энергоатомиздат, 1991. 331 с.
- Безруков В.И. Основы электрокаплеструйных технологий. С.-Петербург: Судостроение, 2001. 488 с.
- Fenn J.B., Mann M., Meng CK. et al. Electrospray Ionization for Mass Spectrometry of Large Bimolecular (rev.). *Science*. 1989, **246**(4926), 64–71.
- Barrero A., Loscerttales I.G. Micro- and Nanoparticles via Capillary Flows? *Annual. Rev. Fluid Mech.* 2007, **39**, 89–106.
- Higuera F.J. Liquid Flow Induced by Ion Evaporation in en Electrified Meniscus. *Phys. Rev.* 2004, E69, 266–301.
- 12. Higuera F.J. Flow Rate and Electric Current Emitted by a Taylor Cone. J. Fluid Mech. 2003, **484**, 303–327.
- 13. Higuera F.J. Current Flow-rate Characteristics of an Electrospray with a Small Meniscus. *J. Fluid Mech.* 2004, **513**, 239–246.
- 14. Gamero-Castano M., Hruby V. Electric Measurements of Charged Sprays Emitted by Cone-jets. *J. Fluid Mech.* 2002, **459**, 245–276.
- Мелчер Дж., Тейлор Дж. Электрогидродинамика: обзор роли межфазных тангенциальных напряжений. Механика, периодический сборник иностранных статей. М.: Мир, 1971. 5, 129, с. 66–99.
- Мелчер Дж. Электрогидродинамика. Магнитная гидродинамика. 1974, (2), 3–30.
- Castellanos A., Zhakin A.I., Atten P., Watson K., Chang J.-S. *Electrohydrodynamics. CISM Courses* and Lectures. No. 380, Ed. A. Castellanos, Wien: Springer, 1998. 363 p.

Поступила 23.03.12 После доработки 03.04.12

#### Summary

The experimental data on forms and electrical characteristics of charged water, ethanol, glycerol and castor oil meniscuses depending on the applied high voltage are presented. It is shown that the field influence on charged meniscuses depends on liquid conduction, viscosity, surface tension and space charge distribution in the air around the meniscus.