

ЭФФЕКТ ОТРИЦАТЕЛЬНОЙ ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНОЙ ВЯЗКОСТИ В МАГНИТНЫХ СУСПЕНЗИЯХ

A. Ю. Зубарев*

Уральский федеральный университет
620002, Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 20 октября 2013 г.

Недавние эксперименты показали, при течении Куэтта концентрированных магнитных супензий во внешнем поле зависимость макроскопического вязкого напряжения от среднего градиента скорости имеет N-образную форму. При уменьшении поля амплитуда N-образной кривой уменьшается, в отсутствие поля напряжение монотонно возрастает со скоростью сдвига. Предлагается модель, объясняющая эту форму реологической кривой. Модель основана на предположении о том, что под действием поля в супензии возникают плотные агрегаты, связывающие противоположные стенки измерительной ячейки. При течении Куэтта агрегаты из-за трения о стенки ячейки отклоняются от приложенного магнитного поля на некоторый угол, определяемый скоростью относительного движения стенок. При достаточно больших скоростях происходит отрыв агрегатов от стенки и их разрушение вязкими силами. Показано, что трение агрегатов о стенки ячейки приводит к начальной возрастающей и убывающей части N-образной реограммы, а течение после отрыва агрегатов соответствует ее правой возрастающей части.

DOI: 10.7868/S0044451014050140

1. ВВЕДЕНИЕ

Магнитореологические жидкости (супензии намагничивающихся частиц в несущей жидкой среде) привлекают большой интерес исследователей и практиков благодаря богатому набору уникальных свойств, ценных для многих современных технологий. Одним из наиболее интересных и важных, с практической точки зрения, свойств этих систем является их способность сильно (на несколько порядков величины) менять свои реологические свойства под действием вполне умеренных магнитных полей. Обзоры работ, посвященных исследованию магнитных супензий и способов их практического применения можно найти в книгах [1, 2].

Как правило, объемная концентрация частиц в магнитных супензиях находится в пределах 10–40 % для обеспечения максимально большого магнитореологического отклика. Естественным выглядит стремление синтезировать супензии с большей концентрацией частиц, чтобы получить системы с максимально высокими магнитореологическими свойствами. Недавно в работе [3] были

проведены исследования реологических свойств сильноконцентрированных магнитореологических супензий с объемной долей магнитных частиц, равной примерно 50 %. Результаты этих экспериментов продемонстрировали существование качественно новых эффектов, ранее в супензиях магнитных частиц не наблюдавшихся.

В работе [3] исследовались супензии сферических частиц на основе железа со средними диаметрами 2, 4, 5 мкм. Измерения проводились на ротационном реометре с измерительной ячейкой, состоящей из двух немагнитных параллельных пластин, имеющих форму дисков. Расстояние между пластинами было около 1 мм, диаметр пластин — порядка 20 мм. Щель между пластинами заполнялась магнитной супензией. Одна из пластин была неподвижно закреплена, вторая могла вращаться вокруг своей оси. Чтобы обеспечить сцепление частиц магнитной супензии с пластинами измерительной ячейки, на последнюю была наклеена наружная бумага. Реометр позволял задавать скорость вращения верхней пластины, пропорциональную средней скорости сдвига в ячейке, и измерять среднее сдвиговое напряжение на этой пластине. Измерительная ячейка была помещена в практически однородное магнитное поле, перпендикулярное стенкам ячейки.

*E-mail: andrey.zubarev@usu.ru

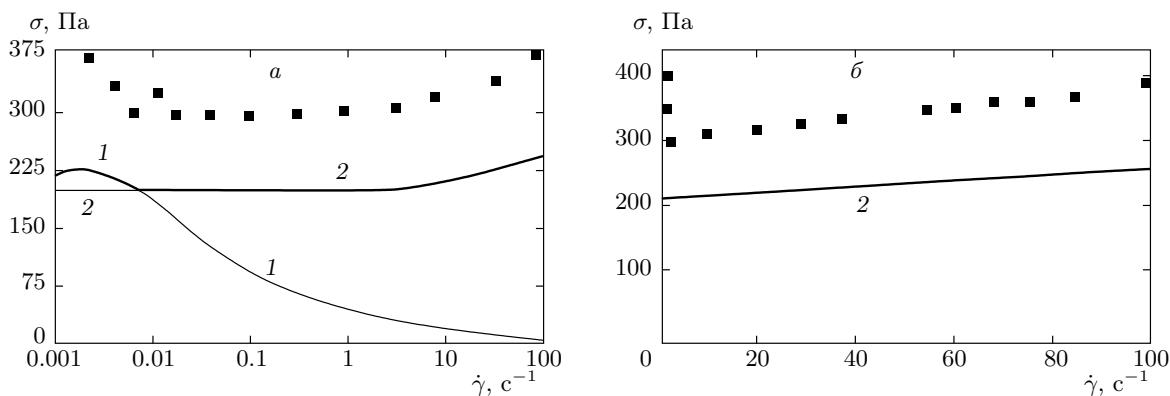


Рис. 1. Результаты экспериментов [3] и расчетов по предлагаемой модели зависимости сдвигового напряжения σ от средней скорости сдвига $\dot{\gamma}$ в логарифмической (а) и нормальной (б) шкалах по $\dot{\gamma}$. Внешнее магнитное поле $H_0 = 20$ кА/м. Магнитная восприимчивость частиц $\chi_p = 250$. Точки — эксперимент [3], линии — расчет: 1 — по формуле (9); 2 — по формуле (15) при $R/\Delta = 500$. Жирные линии — результирующее напряжение

Результаты измерения [3] сдвигового напряжения σ в зависимости от средней скорости сдвига $\dot{\gamma}$ приведены на рис. 1. Видно, что при малых скоростях сдвига $\dot{\gamma}$, (порядка 0.01 с^{-1} и меньше) среднее напряжение σ убывает при увеличении $\dot{\gamma}$. Когда скорость сдвига превышает некоторое критическое значение, несколько большее, чем 1 с^{-1} , напряжение практически линейно возрастает со средней скоростью сдвига $\dot{\gamma}$ во всей области измерений этой скорости (вплоть до $200\text{--}250 \text{ с}^{-1}$).

На убывающем участке реологической кривой, полученной в работе [3], наблюдались автоколебания с пилообразной зависимостью напряжения от времени. Отметим, что подобные автоколебания в концентрированных магнитных суспензиях наблюдались также в работе [4], но из содержания этого сообщения невозможно понять, соответствовали они убывающей или обычной возрастающей зависимости измеряемого напряжения от скорости сдвига. В работе [4] эти автоколебания объясняются механизмом прерывистого движения среды за счет контактного трения частиц друг с другом и со стенками измерительной ячейки. Однако этот механизм не объясняет появления наблюдавшейся в [3] убывающей зависимости среднего напряжения от скорости сдвига и появления автоколебаний именно на этих участках.

В работе [3] отмечалось, что при уменьшении магнитного поля амплитуда N-образной реограммы уменьшалась, а в отсутствие поля напряжение в суспензии монотонно возрастало со скоростью сдвига. Поэтому объяснение обнаруженных реологических эффектов обязательно должно учитывать специфи-

ку поведения суспензий магнитных микрочастиц во внешнем поле.

Обнаруженная в экспериментах [3] N-образная зависимость напряжения от скорости сдвига, а также реологические автоколебания [3, 4] в магнитных суспензиях со сферическими частицами ранее не наблюдались. Поэтому можно говорить об обнаружении нового типа реологического поведения этих сред. Изучение физической природы и особенностей этих явлений представляет интерес как для фундаментальных исследований, так и с прикладной точки зрения.

Отметим, что N-образная форма реограммы слабоконцентрированных магнитных жидкостей (5 % объемной концентрации твердой фазы) со стержнеобразными частицами была обнаружена экспериментально [5]. В работе [6] дано ее теоретическое объяснение, основанное на том, что во внешнем поле магнитные частицы объединяются в объемные кластеры, вытянутые вдоль поля.

Ниже предлагается простая модель, объясняющая, по крайней мере, принципиальные особенности микроскопической природы формирования наблюданной N-образной зависимости напряжения от скорости сдвига в магнитной суспензии со сферическими частицами.

2. НАЧАЛЬНЫЙ УЧАСТОК РЕОЛОГИЧЕСКОЙ КРИВОЙ

Вместо измерительной ячейки ротационного реометра, представляющей собой щель между двумя параллельными вращающимися дисками, рассмотрим

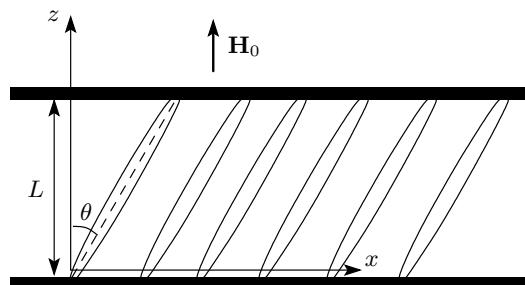


Рис. 2. Иллюстрация щели с агрегатами, перекрывающими измерительную ячейку. H_0 — поле, приложенное к образцу

щель между двумя бесконечными параллельными плоскостями. Будем считать, что эта щель заполнена магнитной суспензией и помещена в магнитное поле, перпендикулярное граничным плоскостям. Одна из плоскостей (скажем, нижняя) закреплена, вторая может двигаться в своей плоскости. Рассматриваемая модель проиллюстрирована на рис. 2. Поскольку толщина щели реальной измерительной ячейки много меньше ее диаметра, плоская модель сохраняет основные черты экспериментальной ситуации, теоретический же анализ в рамках такой модели существенно упрощается.

Основная идея рассматриваемой модели состоит в том, что во внешнем поле намагничивающиеся частицы суспензии образуют плотные агрегаты, вытянутые вдоль поля. Такие агрегаты неоднократно наблюдались в экспериментах с магнитными суспензиями (см. обзоры [1, 2]). При стационарном сдвиге верхней плоскости жестко связанные с ней агрегаты отклоняются от внешнего поля. При этом возникает момент магнитных сил, стремящийся вернуть агрегат к направлению вдоль поля. От агрегатов усилие передается пластинам, противодействуя их сдвигу. Такое противодействие проявляется как упругая реакция магнитной жидкости на стационарный сдвиг. Если приложенное сдвиговое напряжение превышает некоторое критическое значение, называемое статическим пределом текучести, упругая реакция агрегатов не в состоянии его компенсировать и начинается течение системы.

Различные модели стационарного предела текучести магнитных жидкостей с микро- и нанодисперсными частицами предложены в работах [7, 8] (см., также, обзор [1]). В этих моделях предполагается, что жесткая связь агрегатов со стенками щели сохраняется при всех величинах сдвига граничной пластины. Однако анализ показывает, что при опреде-

ленных условиях возможно скольжение агрегатов на граничных пластинах. В работе [9] приведена модель статического предела текучести магнитной суспензии, основанная на предположении о скольжении агрегатов на стенках щели с суспензией.

При скольжении агрегатов по стенкам щели возникают силы динамического трения между агрегатами и стенками. Наиболее вероятным является вязкое трение в тонких прослойках жидкости между частицами и поверхностями стенок. В этом случае сила вязкого трения между доменом и стенкой должна быть пропорциональна скорости относительного скольжения частиц домена и граничной поверхности. В свою очередь, эта скорость пропорциональна среднему градиенту скорости $\dot{\gamma}$ течения суспензии.

Необходимо отметить, что поверхности измерительных ячеек современных реометров, если они не подвергаются специальной полировке, обычно шероховаты и размеры шероховатостей сопоставимы с размерами микронных частиц магнитных суспензий. Именно эти шероховатости обеспечивают сцепление частиц суспензии со стенками ячеек, что приводит к эффекту статического предела текучести.

Частицы могут заполнять микроуглубления поверхности; выступы шероховатостей могут проникать внутрь агрегатов, образованных частицами. Очевидно, сила вязкого сопротивления увеличивается по мере заполнения частицами углубления шероховатостей и уменьшения характерной толщины слоев жидкости между частицами и поверхностью стенки ячейки. В этих ультратонких слоях течение жидкости имеет квази-куэттовский характер, поэтому сила вязкого трения, по крайней мере, в первом приближении, должна быть обратно пропорциональна характерной толщине слоев.

Толщина микрослоев между частицами и стенкой определяется балансом сил расклинивающего давления, отталкивающими частицы от поверхности граничной пластины, и силами, прижимающими частицы к стенке. Величина расклинивающей силы зависит от физико-химических свойств поверхности частиц и стенки измерительной ячейки, от микроскопических деталей формы шероховатой поверхности, а также от особенностей расположения частиц в агрегате. Все эти факторы, как правило, в экспериментах не контролируются. Однако даже если бы эти геометрические и физико-химические данные были получены, сколько-нибудь строгий расчет силы взаимодействия частиц с шероховатой стенкой, имеющей нерегулярную поверхность, оказался бы невозможен в силу больших математических сложностей такой задачи. Поэтому и строгий расчет

силы трения между агрегатами и стенкой для конкретного эксперимента нереален.

Однако из физических соображений очевидно, что чем больше нормальная сила, прижимающая частицы агрегата к стенке, тем больше частиц заполняют неоднородности на ее поверхности, и тем меньше толщина микрослоев между частицами и стенками. Поэтому в качестве простейшего модельного приближения, отражающего эту качественную закономерность, можно принять, что сила вязкого трения между агрегатами и поверхностью щели пропорциональна величине нормальной силы, прижимающей частицы агрегата к стенке, а также скорости сдвига $\dot{\gamma}$ супензии вблизи стенки.

Забегая вперед, отметим, что полученные на основе этого простейшего приближения теоретические результаты качественно и по порядку величины соответствуют экспериментам [3], что говорит о принципиальной адекватности сделанных приближений. Отметим также, что на основе аналогичных представлений о силе трения между частицами в плотных агрегатах магнитных супензий в [10] удалось объяснить аномально высокие значения модулей накопления и потерю энергии в этих системах, а также особенности зависимостей этих модулей как от внешнего поля, так и от толщины щели измерительной ячейки.

Оценим теперь нормальную силу F_z , прижимающую домен к стенке щели. В магнитном поле эта сила состоит из двух составляющих. Первая — сила нормального напряжения Максвелла, возникающая на границе намагничивающейся среды [11]. Вторая сила возникает из-за магнитного момента сил, действующих на вытянутый агрегат, стремящегося повернуть его в направлении внешнего магнитного поля. Обе эти силы для агрегированных магнитных супензий были оценены в работе [9]. Используя полученные в ней результаты можно показать, что для рассматриваемых супензий микронных частиц сила Максвелла существенно больше моментных сил. Здесь, для краткости, эти оценки мы опускаем.

Обозначим через θ угол отклонения домена от приложенного магнитного поля \mathbf{H}_0 (рис. 2). Используя известные результаты для напряжения Максвелла [11], мы можем записать нормальную компоненту этого напряжения в точке контакта домена со стенкой в виде

$$\sigma_{zz}^M = \mu_0 \left[\frac{\mu_d - 1}{2} (\mu_d H_{dz}^2 + H_{dx}^2) - \frac{1}{2} \varphi_d \frac{\partial \mu_d}{\partial \varphi_d} H_d^2 \right], \quad (1)$$

$$H_d^2 = H_{dx}^2 + H_{dz}^2.$$

Здесь H_d — поле внутри домена, μ_0 и μ_d — магнит-

ная проницаемость вакуума и относительная магнитная проницаемость плотного домена, φ_d — объемная концентрация частиц в домене, x и z — декартовы координаты (см. рис. 2).

Отметим, что появление максвелловских расклинивающих напряжений в щели с магнитной супензией, помещенной в нормальное магнитное поле, экспериментально было обнаружено и исследовано в работе [12]. Обозначим среднее поле внутри щели с магнитной супензией через H_s . Основная часть домена, кроме пятен его контакта со стенкой, находится внутри этой щели. Поэтому в первом приближении поле H_d внутри домена можно рассчитывать как поле внутри удлиненного агрегата, помещенного в поле H_s . Используя результаты теории намагничивающегося эллипсоида во внешнем поле [11] и учитывая, что боковая поверхность агрегата контактирует с немагнитной несущей жидкостью, в первом приближении получаем

$$H_{dz} = \left[\frac{\cos^2 \theta}{1 + (\mu_d - 1)n_{||}} + \frac{\sin^2 \theta}{1 + (\mu_d - 1)n_{\perp}} \right] H_s, \quad (2)$$

$$H_{dx} = \frac{(\mu_d - 1)(n_{\perp} - n_{||})}{[1 + (\mu_d - 1)n_{||}] [1 + (\mu_d - 1)n_{\perp}]} \times$$

$$\times H_s \sin \theta \cos \theta.$$

Здесь $n_{||}$ и n_{\perp} — размагничивающие факторы домена соответственно вдоль оси домена и перпендикулярно ей. Среднее по щели поле \mathbf{H}_s , как и внешнее поле \mathbf{H}_0 , направлено перпендикулярно плоскости щели, и выполняется обычное условие магнитостатики $\mu_s H_s = H_0$, где μ_s — эффективная магнитная проницаемость супензии в направлении приложенного поля, т. е. перпендикулярно плоскости щели. Отметим, что соотношение (2) соответствует известному приближению среднего поля, в котором пренебрегается влиянием особенностей взаимного расположения доменов на компоненты \mathbf{H}_d .

Многочисленные исследования показали, что сильные реологические эффекты в магнитных супензиях возникают только в результате образования в них гетерогенных агрегатов, сильно вытянутых под действием магнитного поля [1, 2, 13–18]. Для таких агрегатов справедливы соотношения $n_{\perp} \approx 1/2 \gg n_{||}$. Будем считать, что они выполняются и для рассматриваемых систем.

В плотном агрегате частицы находятся в состоянии физического контакта. Используя результаты теории композиционных материалов [19], для таких систем используем оценку

$$\mu_d \approx 1 + \chi_p \varphi_d, \quad (3)$$

где χ_p — магнитная восприимчивость частиц суспензии. В магнитореологических суспензиях энергия магнитного взаимодействия между частицами намного превосходит тепловую энергию kT , поэтому концентрация частиц в домене близка к концентрации плотной упаковки. Следовательно, для объемной концентрации частиц в домене можно принять оценку $\varphi_d \approx 0.6\text{--}0.7$. Отметим, что оценка (3) несколько завышает магнитную восприимчивость плотной среды, однако, в отсутствие строгих результатов для высококонцентрированных дисперсных систем, она вполне приемлема.

Магнитная проницаемость частиц суспензии существенно больше единицы. Поэтому и проницаемость μ_d плотного домена также много больше единицы. Следовательно, член в квадратных скобках в выражении (1), пропорциональный μ_d^2 , намного больше, чем два остальных члена. Комбинируя уравнения (1) и (2), учитывая, что $n_{\parallel} \ll n_{\perp} \approx 1/2$, в первом приближении получаем

$$\sigma_{zz}^M = \mu_0 \frac{\mu_d^2}{2} \left(1 + \frac{2 \operatorname{tg}^2 \theta}{\mu_d}\right)^2 \frac{H_s^2}{(1 + \operatorname{tg}^2 \theta)^2}. \quad (4)$$

Оценим теперь среднее поле H_s в щели. Из стандартных соотношений магнитостатики получаем

$$H_s = \frac{H_0}{\mu_s}, \quad \mu_s = 1 + \Phi \frac{M_{dz}}{H_s}, \quad M_{dz} = \chi_d H_{dz}, \quad (5)$$

где Φ — объемная концентрация доменов, M_{dz} — соответствующая компонента намагниченности домена. Поскольку для рассматриваемой суспензии энергия магнитного взаимодействия между частицами намного больше тепловой энергии kT , практически все частицы должны быть собраны в плотные агрегаты. В этом случае концентрация Φ может быть оценена из очевидного соотношения $\Phi = \varphi_0/\varphi_d$, где φ_0 — полная объемная концентрация частиц в суспензии. Эксперименты [3] проводились для суспензии с концентрацией $\varphi_0 \approx 0.5$. Выбирая $\varphi_d \approx 0.65$, получаем оценку $\Phi \approx 0.77$.

Используя первое из соотношений (2), учитывая, что μ_d существенно больше единицы, а также указанные соотношения для n_{\parallel} и n_{\perp} , получаем

$$H_s \approx \frac{H_0}{1 + \Phi \chi_d \left(\cos^2 \theta + \frac{2}{\mu_d} \sin^2 \theta\right)}. \quad (6)$$

Итак, в рамках сделанных выше предположений, сила трения между агрегатом и стенкой измерительной ячейки пропорциональна, во-первых, скорости относительного скольжения стенки и агрегата, которая, в свою очередь, пропорциональна

произведению макроскопического градиента скорости $\dot{\gamma}$ и толщины L щели измерительной ячейки. Во-вторых, принимается приближение пропорциональности этой силы и максвелловской силы, прижимающей агрегат к стенке щели. Поэтому сила трения между доменом и стенкой может быть представлена в виде

$$F_{fr} = \xi s_1 \sigma_{zz}^M \dot{\gamma}, \quad (7)$$

где ξ — эмпирический коэффициент трения, определяемый степенью шероховатости стенок и частиц, размером L измерительной щели, физико-химическими свойствами поверхностей стенок щели и частиц, определяющих величину расклинивающего давления между ними, вязкостью несущей жидкости, размером магнитных частиц. Параметр s_1 — площадь контактного пятна домена на стенке. Из геометрических соображений можно получить оценку

$$s_1 \approx s / \cos \theta, \quad (8)$$

где s — площадь поперечного сечения агрегата.

Полная сила трения, действующая на стенку щели, равна $N F_{fr}$, где N — число доменов в щели. Напряжение трения может быть рассчитано по формуле

$$\begin{aligned} \sigma_{fr} = \frac{N F_{fr}}{S} &= \frac{1}{2} \xi \Phi \mu_0 \mu_d^2 \left(1 + \frac{2 \operatorname{tg}^2 \theta}{\mu_d}\right)^2 \times \\ &\times H_0^2 \left[1 + \Phi \chi_d \left(\cos^2 \theta + \frac{2}{\mu_d} \sin^2 \theta\right)\right]^{-2} \times \\ &\times \frac{\dot{\gamma}}{(1 + \operatorname{tg}^2 \theta)^2}. \end{aligned} \quad (9)$$

Здесь S — площадь стенки щели.

Для того чтобы окончательно рассчитать зависимость напряжения σ_{fr} от скорости сдвига $\dot{\gamma}$ нужно выразить угол θ через $\dot{\gamma}$.

В безынерционном приближении, справедливом для всех реальных скоростей течения магнитных суспензий, момент сил трения, действующих на агрегат, должен быть скомпенсирован моментом магнитных сил, ориентирующими агрегат вдоль магнитного поля.

Пусть L — ширина щели в вертикальном направлении (см. рис. 2). Длина агрегата, наклоненного под углом θ относительно магнитного поля, равна $l = L/\cos \theta$. Момент сил трения относительно центра агрегата равен

$$\Gamma_{fr} = \frac{1}{2} l F_{fr} \cos \theta = \frac{1}{2} l s \xi \dot{\gamma} \sigma_{zz}^M = \frac{V_d}{2} \xi \dot{\gamma} \sigma_{zz}^M, \quad (10)$$

где $V_d = l s = L s_1$ — объем агрегата.

Явное выражение для момента Γ_m магнитных сил, действующих на намагничивающийся эллипсоид, можно найти, например, в [11]. В случае сильно вытянутого эллипсоида и $\mu_d \gg 1$ это выражение принимает вид

$$\Gamma_m = \mu_0 V_d \chi_d H_s^2 \sin \theta \cos \theta. \quad (11)$$

Приравнивая моменты (10) и (11), приходим к уравнению относительно угла θ :

$$\frac{\operatorname{tg} \theta (1 + \operatorname{tg}^2 \theta)}{\chi_d + 2 \operatorname{tg}^2 \theta} = \beta \dot{\gamma}, \quad (12)$$

где $\beta = \mu_d \xi / 4 \chi_d \approx \xi / 4$.

Оценить параметр ξ из чисто теоретических соображений, по-видимому, невозможно, так как его значение может существенно зависеть от материала частиц и стенок измерительной ячейки, степени их шероховатости, а также от ряда других факторов. Эти факторы, а также их влияние на макроскопическое напряжение, как правило, не известны. Поэтому на данном этапе развития теории параметр ξ может рассматриваться только как эмпирический.

Выше на рис. 1а сплошной линией 1 показаны результаты расчетов напряжения $\sigma = \sigma_{fr}$ при $\beta = 5 \cdot 10^3$ с. Представленный результат демонстрирует немонотонную (с максимумом) зависимость σ от скорости сдвига $\dot{\gamma}$, т. е. качественно соответствует начальному участку экспериментальных результатов, приведенных на этом же рисунке. Отметим, что самый начальный, возрастающий, участок реологической кривой не был измерен в работе [3]. Объясняется это техническими причинами — трудностью организации течения и проведения измерений с предельно малыми скоростями сдвига. Однако такой участок должен существовать, так как в его отсутствие (т. е. в случае убывающего поведения σ при бесконечно малых $\dot{\gamma}$) состояние покоя суспензии было бы абсолютно механически неустойчивым.

Можно показать, что величина максимума σ не зависит от эмпирического параметра $\beta \approx \xi / 4$, который определяет только соответствующие значения $\dot{\gamma}$. Теоретически рассчитанное значение этого максимума несколько меньше, чем измеренное в экспериментах, однако совпадает с ним по порядку величины. Этот факт объясняется тем, что выбранное для определения H_s приближение среднего поля, как хорошо известно [19], завышает эффективную восприимчивость суспензии μ_s , следовательно, занижает значение H_s . Оценка (3) также занижает эффективную проницаемость домена, следовательно, восприимчивость суспензии μ_s , т. е. занижает

внутреннее поле H_s , действующее на домен. Учитывая сложность изучаемой системы и влияние на наблюдаемые эффекты таких не контролируемых факторов, как детали шероховатости поверхностей стенок измерительной ячейки и частиц, а также физико-химические особенности этих поверхностей, совпадение по порядку величины рассчитанных и экспериментальных значений напряжения σ говорит о принципиальной адекватности модели и выбранного простейшего приближения (7) линейной зависимости силы трения F_{fr} от магнитной силы, прижимающей частицы агрегатов к стенкам измерительной щели.

3. РЕЖИМ РАЗВИТОГО ТЕЧЕНИЯ

При больших углах наклона θ агрегат может оторваться от стенок щели. В этом случае рассматриваемая система будет представлять собой суспензию вытянутых объемных кластеров, проиллюстрированную на рис. 3.

Хорошо известно, что в условиях сдвигового течения плотные агрегаты в магнитных суспензиях разрушаются под действием сдвиговых гидродинамических сил [13–18]. Теория макроскопических реологических свойств магнитных суспензий с агрегатами, длина которых много меньше размеров канала течения, была предложена в работах [13, 14]. В этих работах рассматривался случай неброуновских линейно намагничивающихся частиц; внешнее поле предполагалось направленным вдоль градиента макроскопической скорости течения суспензии. Оба этих условия справедливы для экспериментов работы [3].

В соответствии с теорией [13, 14] стационарное макроскопическое напряжение может быть представлено в виде

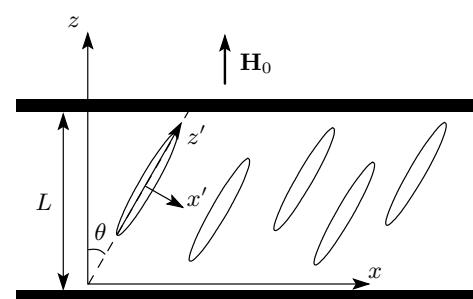


Рис. 3. Иллюстрация суспензии с агрегатами, не перекрывающими измерительную ячейку

$$\sigma = \eta_s \dot{\gamma} + \sigma_a, \quad (13)$$

где $\eta_s \dot{\gamma}$ — напряжение, развивающееся в вязкой жидкости, содержащей агрегаты. В случае очень разбавленной суспензии, в которой концентрация Φ агрегатов очень мала, величина η_s примерно равна вязкости η_0 несущей жидкости. В общем случае эффекты стесненности могут приводить к существенному увеличению η_s по сравнению с η_0 .

Напряжение σ_a появляется из-за момента магнитных сил, действующих на агрегаты. Действительно, вязкие силы стремятся ориентировать вытянутый агрегат вдоль скорости потока, в то время как момент магнитных сил стремится ориентировать его в направлении поля, т. е. вдоль градиента скорости. На макроскопическом уровне это проявляется как возникновение со стороны суспензии дополнительного внутреннего сопротивления макроскопическому гидродинамическому воздействию, т. е. как появление дополнительного напряжения σ_a . Анализ [13, 14] показывает, что разрушение агрегата вязкими силами приводит к тому, что величина σ_a не зависит от градиента скорости $\dot{\gamma}$. Аналогичный вывод о появлении не зависящей от $\dot{\gamma}$ части макроскопического напряжения был сделан в работе [16] при анализе реологических свойств магнитных суспензий с цепочечными агрегатами. Стоит отметить, что выводы работ [13, 14, 16] о не зависимости σ_a от градиента скорости $\dot{\gamma}$ были получены для магнитных суспензий неброуновских частиц. Для суспензий, в которых частицы вовлечены в броуновское движение, зависимость σ_a от $\dot{\gamma}$ может быть весьма существенной [15, 17].

Оценим эффективную вязкость η_s суспензии сильно вытянутых кластеров. Их объемная концентрация Φ была оценена выше. Ее значение $\Phi \approx 0.77$ близко к концентрации максимально плотной упаковки системы бесконечно вытянутых цилиндров, равной 0.907.

Теория эффективной вязкости η_{eff} высококонцентрированной суспензии твердых сфер была развита Френкелем и Акривосом [20]. В соответствии с этой теорией

$$\eta_{eff} = \eta_0 C \frac{(\varphi/\varphi_m)^{1/3}}{1 - (\varphi/\varphi_m)^{1/3}},$$

где C — численный коэффициент, несколько больший единицы (рекомендована оценка $C \approx 9/8$ [20]), φ — объемная концентрация сферических частиц в суспензии, φ_m — концентрация их максимальной плотной упаковки. Повторяя рассуждения теории [20] для высококонцентрированной суспензии

параллельных квазицилиндрических агрегатов, вместо приведенной формулы Френкеля — Акривоса получаем

$$\eta_s \approx \eta_0 \frac{(\Phi/\Phi_m)^{1/2}}{1 - (\Phi/\Phi_m)^{1/2}}. \quad (14)$$

Здесь η_0 — вязкость несущей жидкости, Φ_m — максимальная объемная концентрация кластеров. Подставляя сюда значение вязкости несущей жидкости $\eta_0 = 0.04$ Па·с [3], а также объемную концентрацию плотной упаковки $\Phi_m = 0.907$, приходим к оценке эффективной вязкости $\eta_s = 0.465$ Па·с. Эта вязкость равна тангенсу угла наклона участка линейной зависимости напряжения σ от скорости сдвига $\dot{\gamma}$ (см. рис. 1б). Судя по результатам, приведенным на этом рисунке, из эксперимента следует, что $\eta_s = 0.5$ Па·с. Таким образом, теоретические и экспериментальные результаты для η_s близки. Если учесть, что в выражении (14) опущен множитель C , который, как и в работе [20], должен быть несколько больше единицы, а также то, что концентрация Φ_m плотной упаковки реальных агрегатов должна быть несколько меньше этой концентрации для бесконечных цилиндров, согласие теории и эксперимента можно считать хорошим.

Перейдем теперь к оценке постоянного напряжения σ_a . Вязкое напряжение, развивающееся вытянутыми магнитными агрегатами, может быть оценено из следующего соотношения [13–18, 21]:

$$\sigma_a = \frac{\Phi}{2V_d} \Gamma_m. \quad (15)$$

Здесь, как и выше, Γ_m — момент магнитных сил, действующий на агрегат при его отклонении от магнитного поля, V_d — объем агрегата. Для сильно вытянутых агрегатов момент Γ_m может быть оценен при помощи соотношения (11).

Угол θ отклонения агрегата, длина которого намного меньше ширины L щели с магнитной суспензией, может быть определен из условия равенства магнитного Γ_m и гидродинамического Γ_h моментов сил, действующих на агрегат. Явное выражение для момента Γ_h можно найти, например, в работах [13–15, 21]. Для сильно вытянутого эллипсоидального агрегата справедлива оценка

$$\Gamma_h = V \frac{2r^2}{\ln r} \eta_s \dot{\gamma} \cos^2 \theta, \quad r \gg 1, \quad (16)$$

где r — отношение длины большой оси агрегата к длине его малой оси. Приравнивая моменты (11) и (16), получаем важное для дальнейшего соотношение

$$\frac{r^2}{\ln r} \eta \dot{\gamma} = \mu_0 \chi_d H_s^2 \operatorname{tg} \theta. \quad (17)$$

В соотношения (16), (17) входят две неизвестные величины — угол θ и отношение осей r . Для замыкания задачи необходимо записать условие, определяющее форму (т. е. отношение r) намагничивающегося агрегата, находящегося под действием магнитного поля и разрушающих его гидродинамических сил. С этой целью рассчитаем гидродинамическое напряжение σ_s на поверхности агрегата.

Введем декартову систему координат с началом в центре эллипсоидального агрегата, осью z' , направленной вдоль его главной оси, и осью x' , направленной вдоль малой оси, в плоскости, образованной внешним магнитным полем и скоростью течения суспензии (см. рис. 3). Обозначим через a и b размеры большой и малой полуосей эллипса. По определению, $r = a/b$. На поверхности агрегата в плоскости xz выполняется условие

$$\frac{z'^2}{a^2} + \frac{x'^2}{b^2} = 1. \quad (18)$$

Используя результаты работ [13, 14], получаем оценку абсолютного значения вязкого напряжения на поверхности сильно вытянутого ($r \gg 1$) эллипса:

$$\begin{aligned} \sigma_s = \eta \dot{\gamma} \frac{r^2}{\ln r} & \left[r^2 \left(1 - \frac{z'^2}{a^2} \right) + \frac{z'^2}{a^2} \right]^{-1} \times \\ & \times \left\{ \left[2(1 + \cos 2\theta) \frac{z'}{a} - \frac{r^2}{6} \sin \theta \frac{x'}{a} \right]^2 + \right. \\ & \left. + \left[\sin 2\theta \frac{z'}{2a} + (2 \ln r \cos 2\theta - 1) \frac{x'}{a} \right]^2 \right\}^{1/2}. \end{aligned} \quad (19)$$

Координаты z' и x' связаны между собой соотношением (18).

Расчеты показывают, что напряжение σ_s при всех представляющих интерес значениях угла θ принимает наибольшие значения при $x' \approx 0$, $z' \approx a$, т. е. в непосредственной близости от точки пересечения большой оси эллипса с его поверхностью. В этой точке

$$\sigma_s = \eta \dot{\gamma} \frac{r^2}{\ln r} \left[4(1 + \cos 2\theta)^2 + \frac{1}{4} \sin^2 2\theta \right]^{1/2}. \quad (20)$$

Используя терминологию и соображения работ [13, 14], оценим гидродинамическую силу, срезающую частицы с вершины эллипса следующим образом:

$$f_s = 4\pi R^2 \sigma_s, \quad (21)$$

где R — радиус магнитной частицы. Для эллипса, обладающего устойчивой формой, эта сила

должна компенсироваться магнитной силой, втягивающей частицы внутрь агрегата. В соответствии с работами [13, 14] оценим эту силу следующим образом:

$$f_m = \frac{W_m}{\Delta} \frac{4\pi}{3} R^3, \quad (22)$$

где W_m — плотность магнитной энергии внутри эллипса, характерное смещение частицы, при котором ее еще можно считать принадлежащей агрегату. В работах [13, 14] это смещение не определяется, и его приходится рассматривать как подгоночную величину. Адекватность модели может проверяться тем, что она должна приводить к удовлетворительным соглашениям с экспериментами при разумных значениях этого параметра. Очевидно, таковыми должны быть признаны смещения Δ , намного меньшие радиуса R магнитной частицы. К сожалению, в настоящее время не развиты теории, которые позволили бы без использования подгоночных параметров определять форму и размер объемного магнитного агрегата в условиях сдвигового течения.

Следуя работам [13, 14], представим плотность магнитной энергии в агрегате следующим образом:

$$W_m = -\frac{\mu_0}{2} \mu_d H_s^2 \cos^2 \theta. \quad (23)$$

Используя равенство $f_s = f_m$, после простых преобразований получаем

$$\begin{aligned} \eta \dot{\gamma} \frac{r^2}{\ln r} &= \frac{R}{6\Delta} \mu_0 \mu_d H_s^2 \cos^2 \theta \times \\ &\times \left[4(1 + \cos 2\theta)^2 + \frac{1}{4} \sin^2 2\theta \right]^{-1/2}. \end{aligned} \quad (24)$$

Поле H_s можно оценить при помощи соотношения (6).

Приравнивая правые части уравнений (17) и (24), приходим к уравнению относительно угла θ . Важно, что этот угол не зависит от скорости сдвига $\dot{\gamma}$. Следовательно, напряжение σ_a , определенное при помощи соотношений (11), (15), также не зависит от $\dot{\gamma}$.

Расчеты показывают, что для $\Phi \approx 0.77$ и остальных параметров системы, указанных выше, для больших значений отношения R/Δ напряжение $\sigma_a \approx 200$ Па. По порядку величины этот результат совпадает с экспериментально определенным динамическим пределом текучести, соответствующим экстраполяции линейной части графика на рис. 1б к $\dot{\gamma} = 0$. Тот факт, что теоретическое значение оказывается несколько меньшим экспериментального, снова объясняется, прежде всего, использованием метода среднего поля для вычисления H_s и оценкой (3)

магнитной восприимчивости домена. Как отмечалось выше, оба эти приближения несколько завышают эффективную магнитную восприимчивость μ_d супензии, следовательно, занижают значение внутреннего поля H_s .

Величину градиента скорости $\dot{\gamma}$, при которой происходит переход от режима течения, при котором агрегаты перекрывают измерительную ячейку, к режиму, при котором их длина меньше ширины ячейки, можно оценить из условия равенства напряжений, рассчитываемых по формулам (9) и (15). Исходя из этого, на приведенном выше рис. 1 жирной линией показано рассчитанное результирующее напряжение. Как видно, качественно и по порядку величины полученные результаты соответствуют экспериментам [3].

4. ВЫВОДЫ

Обнаруженная в экспериментах [3] N-образная зависимость напряжения σ от скорости сдвига $\dot{\gamma}$ магнитореологической супензии может быть объяснена сменой двух режимов ее течения.

Первый режим соответствует начальному росту и последующему уменьшению σ с увеличением $\dot{\gamma}$. На этом этапе агрегаты, образованные магнитными частицами под действием внешнего поля, перекрывают измерительную ячейку и скользят по ее стенкам. Вполне возможна также ситуация, когда неровности стенки «срезают» ближайшие к ним слои частиц агрегатов и скольжение агрегата происходит вдоль поверхности, неровности которой заполнены частицами. Обе эти возможности соответствуют развивающейся модели, различия могут проявляться только в значениях эмпирического коэффициента ξ . В работе используется простейшая модель, в рамках которой сила трения между агрегатами и стенками щели прямо пропорциональна силе, прижимающей частицы агрегатов к стенке. В рамках этого приближения рассчитанные значения макроскопического напряжения по порядку величины совпадают с результатами экспериментов, что говорит о принципиальной справедливости сделанных приближений.

На убывающей части реограммы стационарное течение становится неустойчивым. В работах [22, 23] на феноменологическом уровне описания показано, что сочетание этих неустойчивостей с вязкоупругостью супензии приводит к появлению реологических автоколебаний. Такие колебания наблюдались в экспериментах [3, 4]. В основе их микроскопической природы может быть периодическое разрушение

(разрывы) и восстановление агрегатов. Восстановление агрегатов может происходить за счет того, что их остатки, контактирующие с пластинками измерительной ячейки, «встречаются» друг с другом при взаимном движении пластинок. Очевидно, что такой механизм восстановления агрегатов наиболее вероятен для концентрированных супензий, в которых агрегаты расположены достаточно плотно. С этой точки зрения понятно, почему отмеченные автоколебания были обнаружены именно в экспериментах [3, 4] с концентрированными магнитными супензиями и не были обнаружены в экспериментах с умеренно- и слабоконцентрированными магнитными супензиями.

При втором режиме течения, соответствующем достаточно большим скоростям сдвига, магнитная супензия представляет собой систему вытянутых агрегатов, длина которых меньше ширины измерительной ячейки. Напряжение, развиваемое в такой супензии, имеет квази-Бингамовский вид, описываемый соотношениями (13). Эффективная вязкость η_s определяется диссиляцией энергии в тонких слоях жидкости между агрегатами. Динамический предел текучести σ_a определяется моментом магнитных сил, действующих на агрегаты, и особенностями разрушения этих агрегатов сдвиговым потоком. Расчеты величины σ_a , выполненные на основе модели работ [13, 14], приводят к разумному согласию с экспериментами. Разница между предлагаемой теорией и экспериментами [3] объясняется, скорее всего, погрешностью определения эффективной проницаемости μ_s супензии.

Исследование особенностей смены режимов течения, определение соответствующего значения градиента скорости $\dot{\gamma}$, представляет собой отдельную задачу, как для теоретических, так и для экспериментальных исследований.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 12-01-00132, 13-02-91052, 13-01-96047, 14-08-0023), а также Соглашения между Министерством образования и науки РФ и УрФУ от 27.08.2013 (№ 02.A03.21.0006).

ЛИТЕРАТУРА

1. Ferrofluids, Magnetically Controllable Fluids and Their Applications, ed. by S. Odenbach, Lectures Notes in Physics, Springer, Berlin (2002).

2. *Colloidal Magnetic Fluids*, ed. by S. Odenbach, Springer, Lectures Notes in Physics, Springer, Berlin (2009).
3. M. Lopez-Lopez, *Rheological Properties of Concentrated Magnetic Suspensions*, Preprint, Granada University (2012); M. T. Lopez-Lopez, J. D. G. Duran, P. Kuzhir et al., *J. Rheology* (in press).
4. J. Jiang, Yu. Tian, and Y. Meng, in *Abstracts of the 13th Int. Conf. on Electrorheological Fluids and Magnetorheological Suspensions*, ed. by I. Unal (2012), p. 138.
5. M. T. Lopez-Lopez, A. Gomez-Ramirez, L. Rodriguez-Arco et al., *Langmuir* **28**, 6232 (2012).
6. A. Zubarev, M. T. Lopez-Lopez, L. Iskakova, and F. Gonzalez-Caballero, *Soft Matter* **9**, 1902 (2013).
7. G. Bossis, E. Lemaire, O. Volkova, and H. Clercx, *J. Rheol.* **41**, 687 (1997).
8. A. Yu. Zubarev and L. Yu. Iskakova, *Physica A* **365**, 265 (2006).
9. А. Ю. Зубарев, Коллоид. ж. **74**, 739 (2012).
10. M. T. Lopez-Lopez, J. D. G. Duran, L. Rodriguez-Arco et al., *J. Appl. Phys.* **108**, 083503 (2010).
11. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982).
12. J. M. Laun, C. Gabriel, and G. Schmidt, *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **148**, 47 (2008).
13. З. П. Шульман, В. И. Кордонский, Э. А. Зальцгендлер и др., *Магн. гидродинамика* **4**, 30 (1984).
14. V. I. Kordonsky, Z. P. Shulman, S. R. Gorodkin et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **85**, 114 (1990).
15. T. C. Halsey, J. E. Martin, and D. Adolf, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1519 (1992).
16. J. E. Martin and R. A. Anderson, *J. Chem. Phys.* **104**(12), 22 (1996).
17. A. Zubarev and L. Iskakova, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 204138 (2008).
18. S. Odenbach, *Magnetoviscous Effect in Ferrofluids*, Lectures Notes in Physics, Springer, Berlin (2002).
19. Р. Кристенсен, *Введение в механику композитов*, Мир, Москва (1982).
20. N. A. Frankel and A. Acrivos, *Chem. Eng. Sci.* **22**, 847 (1967).
21. В. Н. Покровский, *Гидромеханика разбавленных суспензий*, Наука, Москва (1978).
22. И. А. Башкирцева, А. Ю. Зубарев, Л. Ю. Искакова, Л. Б. Ряшко, Коллоид. ж. **72**, 147 (2010).
23. И. А. Башкирцева, А. Ю. Зубарев, Л. Ю. Искакова, Л. Б. Ряшко, *Прикл. матем. и мех.* **76**, 646 (2012).