УДК 53.087, 538.93

ТЕРМОДИФФУЗИЯ НАНОЧАСТИЦ В ЖИДКОСТИ

Доронин И.С., Иванова Г.Д., Кузин А.А., Окишев К.Н.

ФГБОУ ВПО «Дальневосточный государственный университет путей сообщения», Хабаровск, e-mail: kuzin@festu.kv.ru

Экспериментально исследована светоиндуцированная термодиффузия поглощающих наночастиц (сажистый углерод) в воде. Описана экспериментальная схема, в которой использованы источник лазерного излучения (мощность излучения 60 мВт, длина волны 0,63 мкм) и термограф ИРТИС-2000. Зарегистрированы динамика оптического пропускания и температурного распределения тонкого слоя (30 мкм) среды под действием падающего лазерного излучения. Впервые экспериментально установлен эффект оптической обратной связи – изменение температуры среды за счет термодиффузионного изменения концентрации поглощающих наночастиц. В приближении линейной неравновесной термодинамики рассмотрена модель тонкослойной бинарной среды в поле гауссова пучка излучения. На основе решений линеаризованных уравнений тепло- и массопереноса получены выражения для температуры среды и концентрации частиц в стационарном режиме. Анализ экспериментальных данных и модельных расчетов позволил определить значение термодиффузионной постоянной наночастиц.

Ключевые слова: термодиффузия в жидкости, наночастицы, нелинейное поглощение, термографический метод

A NANOPARTICLES THERMODIFFUSION IN THE LIQUID

Doronin I.S., Ivanova G.D., Kuzin A.A., Okishev K.N.

Far Eastern State Transport University, Khabarovsk, e-mail: kuzin@festu.khv.ru

The absorbing nanoparticles (carbon) light induced thermodiffusion in the water is experimentally investigated. The experimental scheme with laser source (60 mW power, wavelength 0,63 μm) and thermograph IRTIS-2000 is described. The optical transparency and temperature dynamic of the thin film (30 μm) medium under the laser radiation action was registered. An optical feedback effect – the temperature change by thermodiffusion decreasing of the absorbing nanoparticles concentration is firstly obtained in the experiment. The thin film binary medium model in the Gaussian laser radiation field is considered by means the linear nonequilibrium thermodynamic methods. The analytical expressions for medium temperature and nanoparticles concentration in the stationary states are developed from thermo- and mass transition equations. The nanoparticles thermodiffusion constant value is determined from the experimental and theoretical data analysis.

Keywords: thermodiffusion in liquid, nanoparticles, nonlinear absorption, thermographic method

Известны нелинейно-оптические методы исследования кинетических коэффициентов жидких двухкомпонентных сред, основанные на исследовании самовоздействия излучения [4–7, 10] или характеристик динамических голограмм [8, 11]. В обоих случаях механизм оптической нелинейности среды обусловлен перераспределением концентрации компонент в неоднородном световом поле и соответствующем изменении показателя преломления среды.

В ряде работ исследован термодиффузионный механизм нелинейности, обусловленный термодиффузией молекул (эффект Соре) или наночастиц в жидкостях [1–6]. При этом изменение коэффициента поглощения среды обычно не учитывается. В случае различающихся коэффициентов поглощения компонент изменение их концентрации приводит также к изменению коэффициента поглощения среды (просветлению или потемнению), что может быть использовано для определения коэффициента термодиффузии [9, 12–15].

Целью данной работы является теоретическое и экспериментальное исследование термодиффузионного механизма самоиндуцированного просветления двухкомпонентной среды лазерным пучком.

Материалы и методы исследования

Схема эксперимента показана на рис. 1. В качестве источника излучения использовался He-Ne лазер мощностью 60 мВт (длина волны излучения – 0,63 *мкм*). Пространственное распределение температуры фиксировалось термографом «IRTIS 2000» с параметрами: чувствительность на 30–0,05 °C; диапазон измерений –40...+200 °C; точность измерения – ±1 %; пространственное разрешение – 2 мрад; поле зрения камеры – 25×20 град; разрешение кадра – 256×256; время сканирования – 1,5 с.

Эксперименты проводились с двумя типами кювет: толстостенными – толщина стенок 2,25 мм, и тонкостенными – толщина стенок 0,125 мм. В обоих случаях толщина слоя среды составляла 30 мкм. В качестве двухкомпонентной среды использовалась суспензия частиц сажистого углерода (диаметром 0,1... 0,2 мкм) в воде.

Результаты исследования и их обсуждение

При освещении горизонтальной кюветы с суспензией пучком излучения с радиусом 1,8 мм в результате действия термодиффузии в области пучка происходило уменьшение концентрации дисперсной фазы и, соответственно, коэффициента поглощения среды – самоиндуцированное просветление (СИП). Фотография области просветления показана на рис. 2(а). Зернистость

изображения обусловлена разрешением цифрового фотоаппарата. На рис. 2(б) приведена термограмма кюветы с бинарной средой, демонстрирующая радиально симметричное распределение температуры поверхности кюветы. На рис. 2(г) приведена зависимость температуры среды в центре лазерного пучка от времени. Видно, что просветление среды в центре пучка приводит к уменьшению ее температуры. Таким образом впервые экспериментально продемонстрирована отрицательная обратная связь, обусловленная термодиффузией поглощающих частиц, на возможность которой впервые было указано в теоретической работе [14].

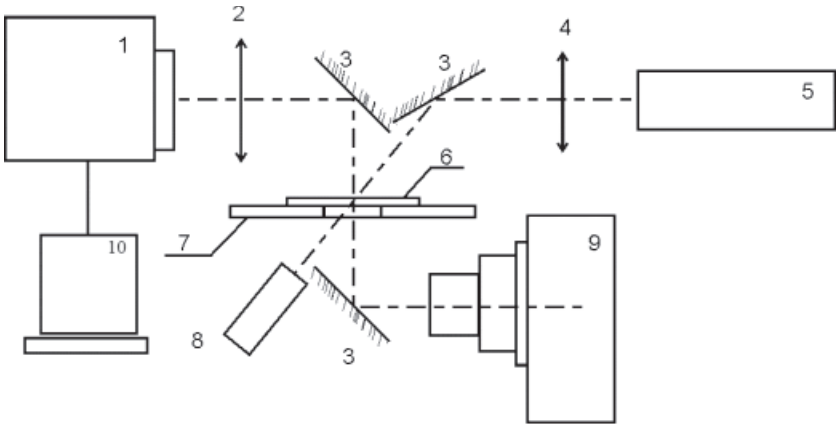
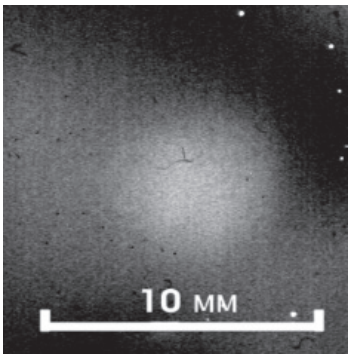
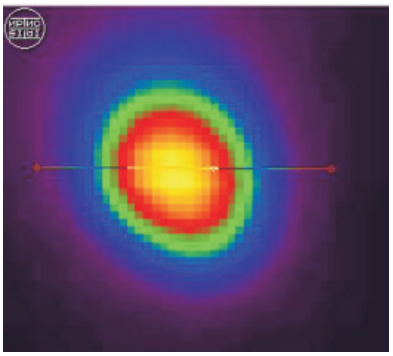


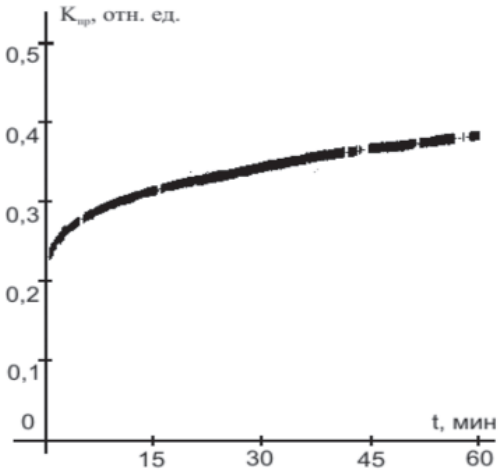
Рис. 1. Схема установки: 1 – термограф ИРТИС-200; 2 – инфракрасный объектив; 3 – зеркало; 4 – фокусирующая линза; 5 – гелий-неоновый лазер; 6 – кювета; 7 – опора кюветы; 8 – фотодиод; 9 – фотоаппарат с микрообъективом; 10 – компьютер



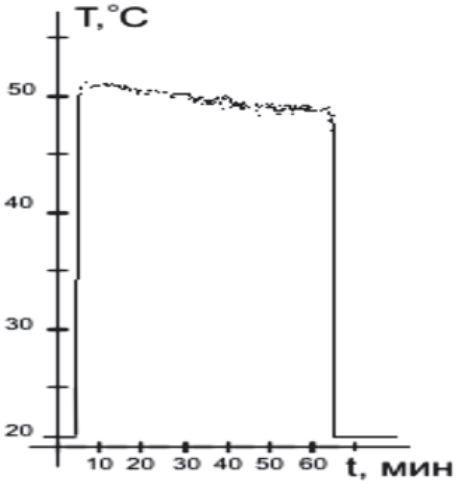
а



б



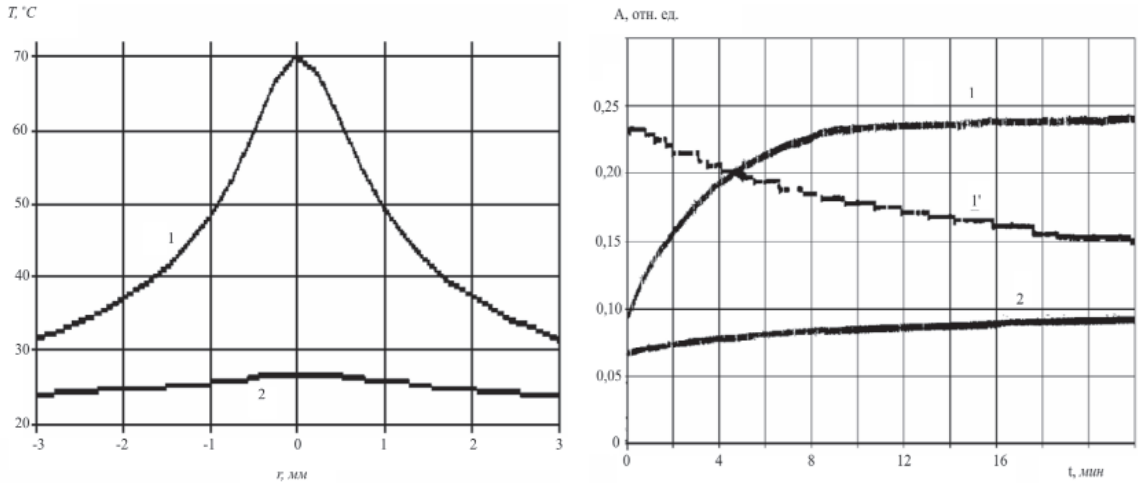
в



г

Рис. 2. а – фотография области просветления; б – термограмма области просветления; в – изменение коэффициента пропускания просветленного участка в процессе экспозиции; г – зависимость температуры поверхности кюветы в центре пучка от времени

Пространственное распределение температуры в установившемся режиме приведено на рис. 3, а. Видно, что из-за низкого теплового сопротивления толстой кюветы в центре пучка она прогревается слабее, что приводит к меньшему градиенту температуры в плоскости слоя среды и, соответственно, к меньшему изменению коэффициента пропускания. Аналогичная зависимость прослеживается и в динамике изменения коэффициента пропускания кювет с разной толщиной стенок (рис. 3, б).



а б

Рис. 3. а – радиальный профиль температуры поверхности кюветы в области просветления; б – зависимость от времени интегрального коэффициента пропускания кюветы, толщина стенок кюветы: кривая 1 – 0,125 мм (1′ – восстановление коэффициента пропускания при уменьшении мощности пучка в 20 раз); кривая 2 – 2,25 мм

Кривая 1′ показывает процесс восстановления коэффициента пропускания тонкой кюветы при уменьшении мощности пучка лазера в 20 раз. Время восстановления соответствует диффузионному ($\tau \approx \omega^2 D_{22}^{-1}$), время просветления (для кривой 1) несколько меньше из-за различия механизмов просветления и восстановления, а также из-за наличия отрицательной обратной связи по поглощаемой мощности, уменьшающей время просветления.

Теоретическая модель явления

Рассмотрим двухкомпонентную жидкофазную среду, коэффициент поглощения которой α целиком определяется одним компонентом с концентрацией C ($\alpha = \beta C$, где $\beta = (\partial\alpha/\partial C)$ – константа среды). Для гауссова пучка распределение интенсивности падающего излучения в плоскости слоя $I = I_0\exp(-r^2/\omega^2)$, где ω – радиус пучка; r – расстояние от оси пучка. Пусть среда находится в тонкой кювете толщиной $(d + 2L) << \omega$ (рис. 4). Система балансных уравнений для концентрации C и теплового потока состоит из уравнений тепло- и массопереноса [2]:

$$c_p, \rho\partial T / \partial t = -\operatorname{div} J_1 + \alpha I_0 \exp(-r^2 / \omega^2); \quad (1)$$

$$\partial C / \partial t = -\operatorname{div} J_2, \quad (2)$$

где c_p, ρ – удельные теплоемкость и плотность среды; T – температура среды; J_1 и J_2 – тепловой и концентрационный потоки соответственно:

$$J_1 = -D_{11}\operatorname{grad}T; \quad (3)$$

$$J_2 = -D_{21}\operatorname{grad}T - D_{22}\operatorname{grad}C, \quad (4)$$

где D_{11} – коэффициент теплопроводности среды; D_{22} – коэффициент диффузии поглощающих частиц; D_{21} – коэффициент термодиффузии наночастиц.

В стационарном режиме, считая, что для малых толщин слоя среды d и окна кюветы L (d, $L << \omega$) можно пренебречь радиальным (вдоль r) тепловым потоком, получаем из (1), (3) одномерную тепловую задачу:

$$0 = D_{11}\partial^2 T / \partial x^2 + \alpha I_0 \exp\left(-r^2 / \omega^2\right). \quad (5)$$

Граничные условия соответствуют конвективному теплообмену на границе раздела окно кюветы–воздух:

$$J_2(\pm L) = \gamma(T_г - T_0), \quad (6)$$

где γ, T_0 – соответственно коэффициент конвективного теплообмена и температура внешней среды, $T_г = T(L + d/2)$. Для температуры среды в центре кюветы из (5)–(6) получаем:

$$T(0,r) = T_0 + \alpha d I_0 \left(L\chi_0^{-1} + \gamma^{-1} + dD_{11}^{-1} / 2\right)\exp\left(-r^2 / \omega^2\right), \quad (7)$$

где χ_0, D_{11} – коэффициенты теплопроводности материала окон кюветы и двухкомпонентной среды соответственно. Для толщин слоя $d << L$ можем пренебречь изменением температуры в слое среды по толщине кюветы и принять ее равной $T(0)$. В установившемся режиме $((\partial T/\partial t) = (\partial C/\partial t) = 0)$ из (4) имеем для распределения концентрации C_s:

$$-D_{21}\mathrm{grad}T - D_{22}\mathrm{grad}C_s = 0. \qquad (8)$$

Интегрируя (8) по объему кюветы с учетом сохранения числа частиц и выражения (7), получаем:

$$C_s = C_0\left\{1+\omega^2 R^{-2}\ln\left[1+BI_0\exp\left(-R^2/\omega^2\right)\right]\right\}^{-1}\left(1+BI_0\exp\left(-r^2/\omega^2\right)\right)^{-1}, \qquad (9)$$

где $B = \beta d\left(L\chi_0^{-1}+\gamma^{-1}+d\chi_c^{-1}/2\right)D_{21}D_{22}^{-1}$; C_0 – начальная концентрация частиц; R – внутренний радиус цилиндрической кюветы.

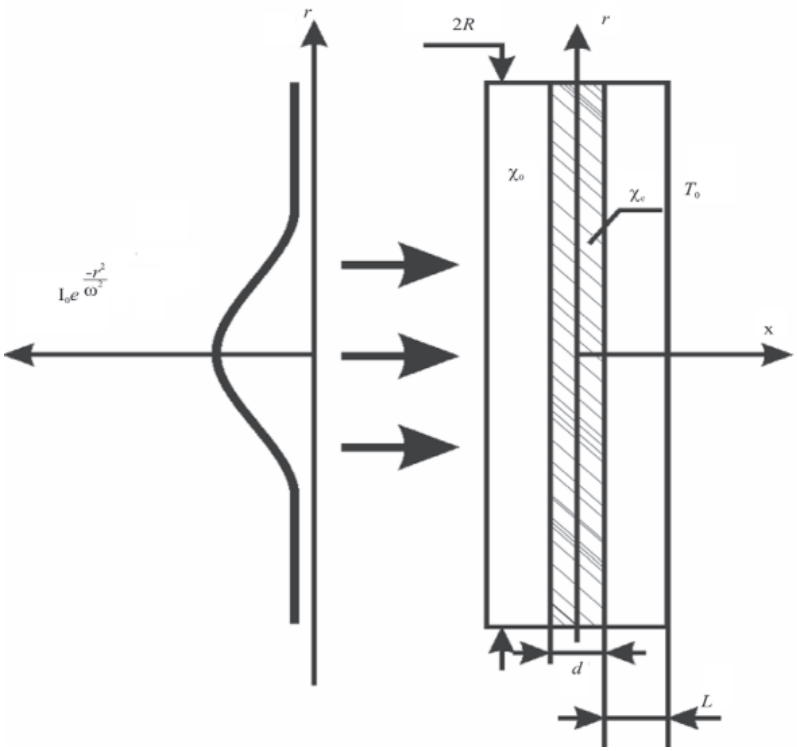


Рис. 4. К расчету термодиффузионного просветления двухкомпонентной среды в тонкослойной цилиндрической кювете

Полученные выражения позволяют определить кинетические коэффициенты среды из экспериментальных данных о параметрах наведенного излучением просветления. В частности, время установления концентрации наночастиц соответствует диффузионному.

Термодиффузионную постоянную определяем из стандартной формулы для установившегося распределения концентрации [2]:

$$\alpha_T = (\nabla C/C)(\nabla T/T)^{-1}. \qquad (10)$$

Из экспериментальных данных (рис. 2, 3) можно получить величину $\alpha_T = 0{,}8 \pm 0{,}025$, что соответствует характерным величинам для наночастиц в жидкости [2, 15].

Выводы

Приведенные результаты показывают, что в двухкомпонентной среде с поглощающими частицами термодиффузия может приводить к значительной величине самоиндуцированного просветления среды под действием пространственно ограниченного оптического пучка. Поэтому самоиндуцированную модуляцию коэффициента поглощения необходимо учитывать при анализе концентрационных нелинейностей бинарных смесей [2, 11–13], а также в методах оптической диагностики наносред, в частности, в термолинзовой спектроскопии многокомпонентных сред [3].

Список литературы

1. Бергер Н.К., Иванов В.И., Суходольский А.Т. О применении капиллярного термофореза в динамической голографии // Краткие сообщения по физике ФИ им. П.Н. Лебедева АН СССР. – 1988. – № 10. – С. 11–14.

2. Иванов В.И. Термоиндуцированные механизмы записи динамических голограмм. – Владивосток: Изд-во Дальнаука, 2006. – 143 с.

3. Иванов В.И., Иванова Г.Д., Хе В.К. Термолинзовая спектроскопия двухкомпонентных жидкофазных сред // Вестник Тихоокеанского государственного университета. – 2011. – № 4. – С. 39–44.

4. Иванов В.И., Карпец Ю.М., Ливашвили А.И., Окишев К.Н. Самовоздействие гауссова пучка в жидкофазной микрогетерогенной среде // Известия Томского политехнического университета. – 2005. – Т. 308. – № 4. – С. 23–24.

5. Иванов В.И., Ливашвили А.И. Самовоздействие гауссового пучка излучения в слое жидкофазной микрогетерогенной среды // Оптика атмосферы и океана. – 2009. – Т. 22. – № 8. – С. 751–752.

6. Иванов В.И., Кузин А.А, Ливашвили А.И. Термоиндуцированное самовоздействие гауссова пучка излучения в жидкой дисперсной среде // Вестник Новосибирского государственного университета. Серия: Физика. – 2010. – Т. 5. – № 1. – С. 5–8.

7. Иванов В.И., Кузин А.А., Ливашвили А.И., Хе В.К. Динамика светоиндуцированной тепловой линзы в жидкофазной двухкомпонентной среде // Научно-технические ведомости Санкт-Петербургского государственного политехнического университета. Физико-математические науки. – 2011. – Т. 134. – № 4. – С. 44–36.

8. Иванов В.И., Ливашвили А.И., Лобов А.И., Симаков С.Р. Динамические голограммы в микрогетерогенных жидкофазных средах // Оптический журнал. – 2004. – № 9. – С. 26–28.

9. Иванов В.И., Ливашвили А.И., Окишев К.И. Термодиффузионный механизм изменения оптического пропускания двухкомпонентной среды // Известия высших учебных заведений. Приборостроение. – 2008. – Т. 51. – № 3. – С. 50–53.

10. Иванов В.И., Ливашвили А.И. Самовоздействие гауссова пучка излучения в слое жидкофазной микрогетерогенной среды // Оптика атмосферы и океана. – 2009. – Т. 22. – № 8. – С. 751–752.

11. Иванов В.И., Окишев К.Н. Термодиффузионный механизм записи амплитудных динамических голограмм в двухкомпонентной среде // Письма в «Журнал технической физики». – 2006. – Т. 32. – № 22. – С. 22–25.

12. Иванов В.И., Окишев К.Н., Карпец Ю.М., Ливашвили А.И. Термодиффузионный механизм просветления двухкомпонентной среды лазерным излучением // Известия Томского политехнического университета. – 2007. – Т. 311. – № 2. – С. 39–42.

13. Ливашвили А.И., Кузин А.А. Термодиффузионный механизм нелинейного поглощения жидкофазной дисперсной среды // Научно-технические ведомости Санкт-Петербургского государственного политехнического университета. – 2009. – № 88. – С. 83–85.

14. Tabiryan N. and Luo W.. Soret feedback in thermal diffusion of suspensions / Phys. Rev. E, – 1998. Vol. 57. – № 4. – P. 4431–4438.

15. Leppla C., Wiegand S. Investigation of the Soret effect in binary liquid mixtures by thermal-diffusion-forced Rayleight scattering / Philosoph. Mag. – 2003. – Vol. 83. – № 17–18. – P. 1989–1999.

References

1. Berger N.K., Ivanov V.I., Suhodol'skiy A.T. O primenenii kapillyarnogo termoforeza v dinamicheskoy golografii // Kratkie soobscheniya po fizike FI im. P.N. Lebedeva AN SSSR. 1988. no. 10. pp. 11–14.

2. Ivanov V.I. Termoindutsirovannye mehanizmy zapisi dinamicheskih gologramm. Vladivostok: Izd-vo Dal'nauka, 2006. 143 p.

3. Ivanov V.I., Ivanova G.D., He V.K. Termolinzovaya spektroskopiya dvuhkomponentnyh zhidkofaznyh sred // Vestnik Tihookeanskogo gosudarstvennogo universiteta. 2011. no. 4. pp. 39–44.

4. Ivanov V.I., Karpets Yu.M., Livashvili A.I., Okishev K.N. Samovozdeystvie gaussova puchka v zhidkofaznoy mikrogeterogennoy srede // Izvestiya Tomskogo politehnicheskogo universiteta. 2005. Tom 308. no. 4. pp. 23–24.

5. Ivanov V.I., Livashvili A.I. Samovozdeystvie gaussovogo puchka izlucheniya v sloe zhidkofaznoy mikrogeterogennoy sredy // Optika atmosfery i okeana. 2009. Tom 22. no. 8. pp. 751–752.

6. Ivanov V.I., Kuzin A.A, Livashvili A.I. Termoindutsirovannoe samovozdeystvie gaussova puchka izlucheniya v zhidkoy dispersnoy srede // Vestnik Novosibirskogo gosudarstvennogo universiteta. Seriya: Fizika. 2010. Tom 5. no. 1. pp. 5–8.

7. Ivanov V.I., Kuzin A.A., Livashvili A.I., He V.K. Dinamika svetoindutsirovannoy teplovoy linzy v zhidkofaznoy dvuhkomponentnoy srede // Nauchno-tehnicheskie vedomosti Sankt-Peterburgskogo gosudarstvennogo politehnicheskogo universiteta. Fiziko-matematicheskie nauki. 2011. T. 134. no. 4. pp. 44–36.

8. Ivanov V.I., Livashvili A.I., Lobov A.I., Simakov S.R. Dinamicheskie gologrammy v mikrogeterogennyh zhidkofaznyh sredah // Opticheskiy zhurnal. 2004. no. 9. pp. 26–28.

9. Ivanov V.I., Livashvili A.I., Okishev K.I. Termodiffuzionnyj mehanizm izmeneniya opticheskogo propuskaniya dvuhkomponentnoy sredy // Izvestiya vysshih uchebnyh zavedeniy. Priborostroenie. 2008. T. 51. no. 3. pp. 50–53.

10. Ivanov V.I., Livashvili A.I. Samovozdeystvie gaussova puchka izlucheniya v sloe zhidkofaznoy mikrogeterogennoy sredy // Optika atmosfery i okeana. 2009. T. 22. no. 8. pp. 751–752.

11. Ivanov V.I., Okishev K.N. Termodiffuzionnyj mehanizm zapisi amplitudnyh dinamicheskih gologramm v dvuhkomponentnoy srede // Pis'ma v «Zhurnal tehnicheskoy fiziki». 2006. T. 32. no. 22. pp. 22–25.

12. Ivanov V.I., Okishev K.N., Karpets Yu.M., Livashvili A.I. Termodiffuzionnyj mehanizm prosvetleniya dvuhkomponentnoy sredy lazernym izlucheniem // Izvestiya Tomskogo politehnicheskogo universiteta. 2007. T. 311. no. 2. pp. 39–42.

13. Livashvili A.I., Kuzin A.A. Termodiffuzionnyj mehanizm nelineynogo pogloscheniya zhidkofaznoy dispersnoy sredy // Nauchno-tehnicheskie vedomosti Sankt-Peterburgskogo gosudarstvennogo politehnicheskogo universiteta. 2009. no. 88. pp. 83–85.

14. Tabiryan N. and Luo W. Soret feedback in thermal diffusion of suspensions / Phys. Rev. E, 1998. Vol. 57. no. 4. pp. 4431–4438.

15. Leppla C., Wiegand S. Investigation of the Soret effect in binary liquid mixtures by thermal-diffusion-forced Rayleight scattering / Philosoph. Mag. 2003. Vol. 83. no. 17–18. pp. 1989–1999.

Рецензенты:

Карпец Ю.М., д.ф.-м.н., профессор кафедры физики, профессор кафедры «Автоматика, телемеханика и связь», ФГБОУ ВПО «Дальневосточный государственный университет путей сообщения», г. Хабаровск;

Криштоп В.В., д.ф.-м.н., профессор кафедры физики, профессор кафедры «Физика и теоретическая механика», ФГБОУ ВПО «Дальневосточный государственный университет путей сообщения», г. Хабаровск.

Работа поступила в редакцию 11.04.2014.