

用光学方法研究玻璃微珠 电流变液颗粒间的相互作用^{*}

董翔, 陈哲怡, 张莉菲, 徐骏, 蒋永刚, 周鲁卫^{**}

(复旦大学应用表面物理国家重点实验室及物理系, 上海 200433)

摘要: 运用一套适合研究颗粒间相互作用的双光镊系统,通过对颗粒聚集时间的测量,得出颗粒聚集时间和电场的平方成反比。这是第一次用电流变液颗粒在动态情况下直接验证电偶极子对间的相互作用。发展了一套使用高速 CCD 摄像机进行扩散波谱(DWS)测量的方法,首次实时测量具有颗粒结构的非各态历经体系的自相关函数,以研究电流变液机理,得到了玻璃微珠电流变液的结构响应时间和力的响应时间,测量了不同电场下体系相关函数的特征衰减时间随时间的变化。在不同电场下测量扩散系数可以反映出相互作用力与电场的平方成正比。

关键词: 电流变液;相互作用;光镊;扩散波谱

中图分类号:O482.4 文献标识码:A

1 光镊

综合利用光镊定位、高速摄像和图像处理系统研究电流变液颗粒,在动态情况下直接验证交变电场下电偶极子对间的相互作用。测量了两个微米量级的玻璃微珠之间作用力与球心间距和结构形成时间的关系,获得电流变颗粒在交流电场作用下的结构响应时间和相互作用强度。所采用的光镊-摄像-影像处理系统的空间分辨率为 $0.26 \mu\text{m}$,图像最高采样率为每秒 8000 幅,对应的最优时间分辨率为 0.125 ms 。由于所研究的体系是真实的电流变颗粒体系,所以对寻找更好的电流变液材料具有指导意义。

由于在电场中布朗运动平均力与偶极子相互作用力相比可以忽略($\propto 10^{-6}$)^[1] ($T \approx 298 \text{ K}$, $\epsilon_f \approx 7.3$, 颗粒半径 $a \approx 10^{-5} \text{ m}$, 介电失配值 $\beta \approx 3.2$, $E_0 \approx 10^6 \text{ V/m}$)。在忽略布朗运动后,源于相似性原理,液体中颗粒运动时的动能项与粘滞项之比值反比于颗粒半径平方。对于毫米级颗粒,弛豫时间为 10^2 s 量级;对于微米级颗粒,弛豫时间则为 10^{-6} s 量级。所以只有在颗粒直径很小时体系才可以近似看作处于准静态,因而用微米量级的介电颗粒可以对真实电流变液颗粒运动状态进行研究。

本工作研究在硅油中的微米量级的玻璃颗粒之间的相互作用,因为光镊可以在方向和位置上对微小颗粒进行亚微米级控制,我们可以用它在交流电场下控制颗粒,当光镊释放后用高速摄像机拍摄电场中两个相互作用的玻璃颗粒的运动轨迹,从运动轨迹推断出两颗粒间的相互作用。我们通过两种方法测量两个介质颗粒间的偶极相互作用。在静止情况下,通过临界电场的测量我们直接得到了颗粒间的相互作用力。我们也可以通过临界光强的测量得到颗粒

^{*} 国家自然科学基金资助项目(19834020)。

^{**} 通讯联系人, Email: lwzhou@fudan.edu.cn

收稿日期:2001-08-14;修回日期:2001-9-3。

间的相互作用,通过衰减片可以控制一束激光,从而改变激光对一个颗粒的作用力。

用功率 150 mW、波长为 532 nm 的 Nd:YAG 激光(CrystalLaser LC GCL-150-S)经过透镜组扩束变成平行光,再由反射镜后转 90°,由偏振分光棱镜(PBSC)将激光分成两束,再经过步进反射镜转台(SMD),两束激光经过偏振分光棱镜会聚后进入显微镜(Olympus IX70),物镜采用 100 倍的油浸镜头(Olympus ACH 100X/1.25 Oil),由高速 CCD(RedLake PCI8000S,最高采样率 8000 幅/秒)观察并记录,并将信号送入计算机处理。实验所用样品池中,平行的平板电极间距为 1 mm。用双重光镊可以独立控制两个颗粒的运动,在交变电场中观察并记录两个颗粒的运动轨迹。可以由高速摄像机拍摄的图像得到两个颗粒间位移和时间的关系,进而计算出颗粒间的相互作用,并将颗粒间的相互作用和电场作用下颗粒间的偶极相互作用比较。实验中,样品的体积分数很小,在研究两颗粒间的相互作用时,其它颗粒的作用可以忽略不计。光镊空间分辨率为 $\frac{1.22\lambda_0}{n} \sqrt{\left(\frac{n}{NA}\right)^2 - 1}$,如果物镜数值孔径 $NA = 1.25$,颗粒折射率 $n = 1.5$,对于波长 λ_0 为 532 nm 的 Nd:YAG 激光,空间分辨率为 0.26 μm 。

我们用的其中一个样品是玻璃颗粒/硅油体系,在硅油(运动黏度为 10 mm^2/s ,相对介电常数为 2.5)中加入了直径为 2 μm 的玻璃颗粒(日本积水化工,相对介电常数为 4.5,在 160°C 下干燥 24 h)。

1.1 聚集时间的测量

聚集时间代表电流变液结构形成的快慢。利用光镊将两个电流变颗粒(2 μm 的玻璃颗粒)移动到所需位置(球心间距约 5 μm 左右),并使其静止;同时加上有效值为 212707 V/mm、频率为 1 kHz 的交变电场,然后撤去光镊,电流变颗粒在电场作用下运动,颗粒最终碰撞。用高速摄像机拍摄的在交变电场作用下电流变颗粒运动的状况。

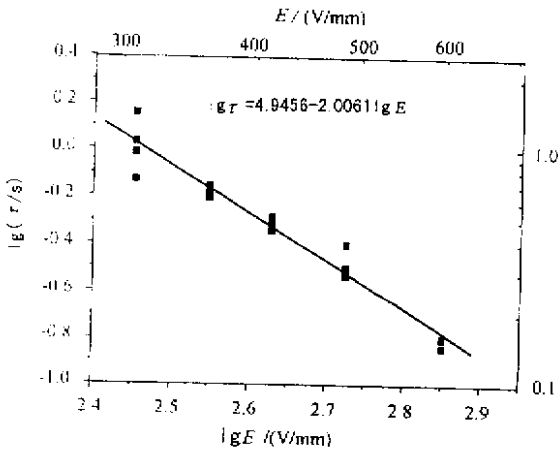


图1 聚集时间与交流电场强度(有效值)的关系

Fig.1 Relation between aggregation time and effective AC electric field

由于体系可以看作处于准静态,我们得出颗粒中心间距从 2.8a 到 2.0a(相撞时颗粒中心间距)所用的聚集时间和电场的平方成反比(见图1)。图中的黑点是实验数据,直线是线性拟合的结果。我们也做了间距变化从 3.0a 至 2.0a、从 2.5a 至 2.0a、从 2.3a 至 2.0a 的实验,同样得到光镊释放后两颗粒聚集时间和电场的平方成反比的结果。这和 Klingenberg 计算所得的结构形成所需的时间随 E^{-2} 变化的结论相符合^[1]。这是第一次用真实电流变液颗粒在动态情况下直接验证电偶极子对间的相互作用。

1.2 结构强度

小颗粒的相互作用代表了体系的结构强度。我们分别在临界电场和临界光强的情况下研究了电流变液中颗粒的相互作用。我们得到了在恒定功率的光镊捕陷下颗粒初始中心间距 d 与恰能使颗粒脱离的临界外电场间的关系,下一步将研究恒定电场下光镊捕陷下颗粒初始中心间距 d 与恰能使颗粒脱离的临界光强间的关系。

2001年10月

CHINESE JOURNAL OF CHEMICAL PHYSICS

Oct. 2001

首先,我们观测了在静态情况下使恒定功率光镊捕获的颗粒恰能脱离光镊束缚时的临界电场与两颗粒中心间距的关系。在我们的实验中,我们利用每路光强功率为 10.8 mW 的两路光镊捕获颗粒,并将它们沿电场方向、初始中心间距为 d 放置,缓慢增加电场,使颗粒间相互作用力逐渐增大,直到其中某一颗粒脱离光镊束缚,记录此时的电场(临界电场)。因为外加电场恒定,由此我们将可以得到初始距离 d 与颗粒脱离时的光强的关系。因为光镊保持恒定的功率,由此我们可以得到初始距离 d 与颗粒脱离时外电场 E 的关系。实验结果如图 2 所示。图中的黑点是实验数据,直线是线性拟合的结果。

根据文献^[2]可以得到在 f 不变的条件下 E 正比于 d^2 。实验结果与其理论符合的很好。我们还可利用每路光强功率为 10.8 mW 的两路光镊捕获颗粒,利用临界光强测量相互作用力。其中一路光镊前加上一片衰减片,这时我们可以自由调节这路光镊的功率,并将颗粒沿电场方向、初始中心间距为 d 放置,缓慢调节衰减片,使光镊对颗粒的作用力逐渐减小,直到其中某一颗粒脱离光镊束缚,记录此时的光强(临界光强)。

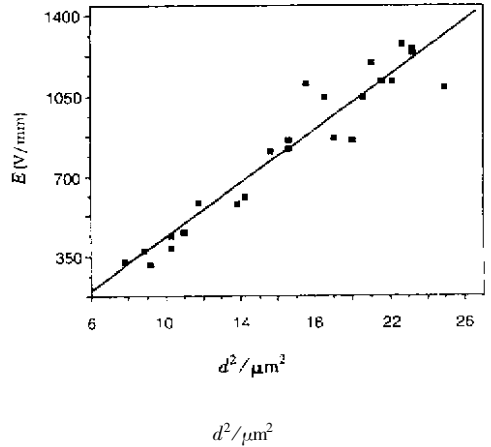


图 2 恒定功率光镊捕获下临界电场与两颗粒中心间距的关系

Fig. 2 Relation between the critical field under constant powered optical trapping and center distance between glass beads

2 扩散波谱

扩散波谱(DWS)通过研究在体系中经过多次散射的光强变化,得到体系的自相关函数、自相关函数的特征衰减时间、颗粒位置变化平方的平均值。DWS可以研究颗粒体积分数比较大的体系,可以研究电场下大小和波长同数量级的颗粒体系,并获得和颗粒相互作用有关的信息。DWS实验要求样品具有一定的厚度,以保证几乎没有非散射光通过样品。由于激光在样品池中经过多重散射,所以必须采用高功率、长相干长度的激光。我们采用功率 150 mW、TEM₀₀模、波长 532 nm 的 Nd:YAG 激光(CrystaLaser LC GCL-150-S)相干长度超过 100 m。输出功率在 24 h 内波动不大于 0.25%。

电场下的电流变液体系是一个非各态历经体系,也就是说体系的时间平均值和系综平均值不一致,这主要是因为空间各点得到的关联函数是不一样的。采用单根单模光纤的主要问题是只能获得单点的关联函数,无法得到体系关联函数的系综平均值。采用多根阵列单模光纤或者双层样品加单根单模光纤法,虽然可以得到体系关联函数的系综平均值,但是为了得到一定的测量精度($N^{-1/2}$),需要进行长时间($\gg \tau$)的平均,无法对体系关联函数的快速变化进行实时测量,因而无法研究电流变液颗粒结构的快速变化。

Wong 首先证明了用 CCD 测量 DLS 的可行性^[3]。自相关函数在透射光照射的像素环周围被取样平均,自相关函数在以透射光束位置为中心的环上做平均。Kirsch 在传统的 DLS 装置中利用了 CCD 探测器^[4]测量了所谓的多光斑自相关函数。在他们的情况中,不是对方位角作平均,而是对一些有限数目的小斑点作平均。

我们发展了一套测量 DWS 的新方法,利用高速摄像机测量体系的实时相关函数和透射率。由于 CCD 具有多点同时测量的能力,在拍摄速度为 8000 幅/秒,分辨率为 130X30 像素的

情况下,系综平均之后,125 ms 的片段就足以保证一定的测量精度,从而可能实时测量体系的自相关函数,研究电流变液的颗粒结构随时间的快速演化。在本工作中发展了一套软件,对此测量方法中的暗噪声、杂散光和有限的探测区域对自相关函数的影响进行了详细的分析,使我们

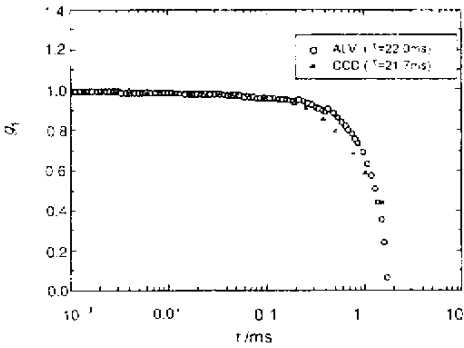


图 3 用单模光纤 DWS 与用高速 CCD DWS 测得的相关函数比较

Fig.3 Comparison of correlation functions obtained with single mode fiber DWS and high speed CCD DWS

我们从测量的 CCD 信号的自相关函数中得到场的自相关函数。相关器算法和数据校正步骤被设计用于研究各态历经和非各态历经的样品。为检验这种方法的正确性,对于各态历经体系,我们又用 ALV-5000E 系统进行对比测量,发现用两种方法所测得相关函数特征衰减时间的偏差小于 2% (见图 3)。

我们采用玻璃微珠/硅油体系,玻璃微珠经脱水处理(160℃/24 h),体积分数为 2%。为了得到样品的吸收系数,我们利用一个厚度可变的样品池对不同厚度样品进行了透射率的测量,由图中可以得到衰减长度大约是 4 mm。

由图 4 可以看出,随着电场的提高透射率有明显的变化。这种变化表现在两个方面,首先,电场提高时,透射率升高的速率变快,结构响应的的时间变短;其次,不同电场达到的透射率(稳定时)的值不同(在达到饱和以前)高电场的透射率稳定值也高。这反映体系结构在电场下的演化过程,也就是从随机分布到电流变液基态的过程。结构越接近于基态,透射率越高。

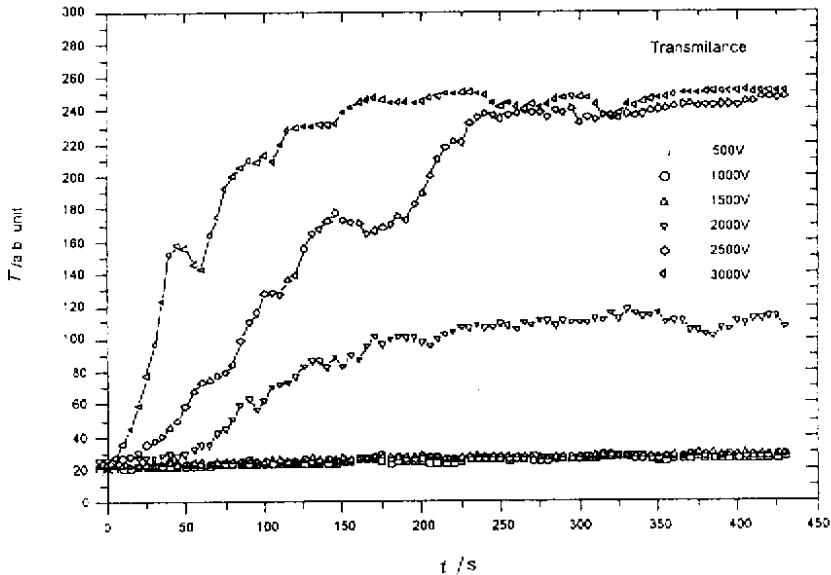


图 4 不同电场下透射率随时间的变化

Fig.4 Time variation of transmittance under different fields

和扩散系数(如图 5 所示)一样,相关函数的特征衰减时间也反映了体系中的相互作用(如图 6 所示),而且更加直接的反映了体系中的相互作用的时间尺度。通过由第一性原理计算得出的 $l^* = 818 \mu\text{m}$,从而可以算得相关函数的特征衰减时间。

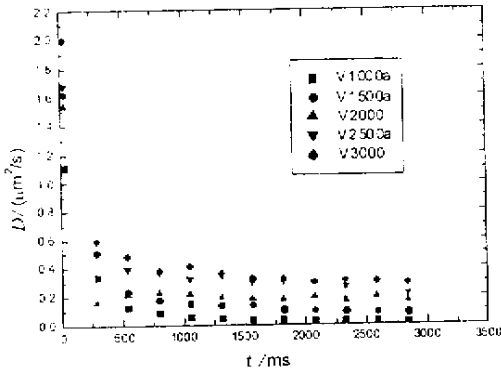


图 5 不同电场下扩散系数随时间的变化

Fig.5 Time variation of diffusing coefficients under different fields

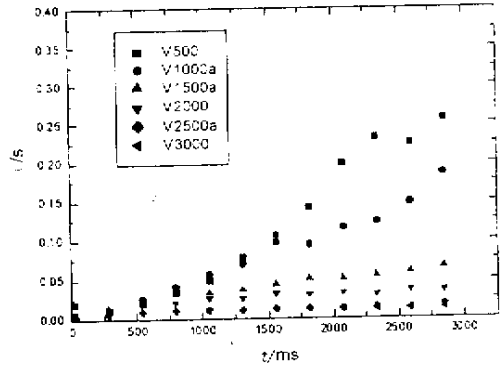


图 6 不同电场下相关函数的特征衰减时间随时间的变化

Fig.6 Time variation of characteristic decay time of correlation function under different fields

在不同电场下测量扩散系数 D 可以反映出相互作用与电场的关系, 由于体系基本上是电场下净电荷的迁移作用, 我们预测到 $D - E^2$ 在图 7 中我们得到拟合后的斜率为 2.19, 和我们的预测基本吻合。偏差可能来源于结构中的偶极相互作用^[5]。

扩散系数反映了体系中颗粒间的相互作用, 由图 5 可以看出随着电场的增大颗粒间相互作用也随即增大。我们的实时 DWS 测量方法还可以进行瞬态的研究, 由图可以看出力的响应时间是百毫秒量级的。和其他的一些实验结果相吻合^[6]。在电场建立的瞬间扩散系数很大, 然后慢慢衰减至一个稳定值, 这也反映出了结构对相互作用的影响。

用光镊和扩散波谱等光学手段可以在介观的长度尺度上、微秒的时间尺度上研究真实电流变液颗粒的相互作用, 从而有可能把电流变液的剪切应力等宏观性质和电流变液的介观甚至微观性质联系起来, 从而较深入地理解电流变液的机理。

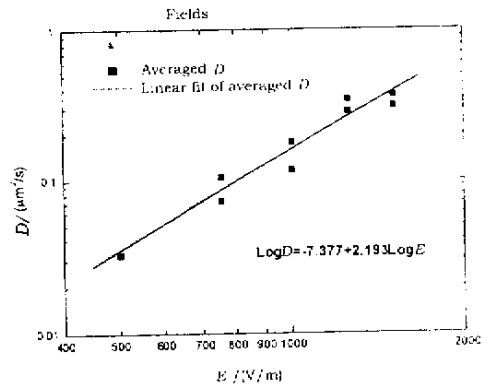


图 7 扩散系数与电场的关系

Fig.7 Relation of diffusing coefficients and electric fields

参 考 文 献

- [1] Klingenberg D J, van Swol F, Zukoski C F. *J. Chem. Phys.*, 1989, **91**: 7888
- [2] Tao R, Jiang Qi, Sim H K. *Phys. Rev. E*, 1999, **52**: 2727
- [3] Wong A P Y. *Rev. Sci. Instrum.*, 1993, **64**: 254
- [4] Kirsch S. *J. Chem. Phys.*, 1996, **104**: 1758
- [5] Sch'tze K. *Quantum Optics*, 1990, **2**: 287
- [6] Ginder J M. *Phys. Rev. E*, 1993, **47**: 3418

Optical Study of Interactions of Glass Beads ER Particles*

Dong Xiang, Chen Zheyi, Zhang Lifei, Xu Jun, Jiang Yonggang, Zhou Luwei**

(State Key Laboratory of Applied Surface Physics, Physics Department, Fudan University, Shanghai 200433)

Abstract The amount of ER effect is determined by the difference of dielectric constants of ER particles base liquid. The intensity of ER fluids can be characterized by the interaction of two particles. A double optical tweezers system suitable to study particle interaction is used to measure the particle aggregation time, and it is found that the particle aggregation time is proportional to the square of the electric field. This is the first time to directly measure the interaction of the electric dipoles of ER particles. A method is developed to use high speed CCD in measuring diffusing - wave spectroscopy (DWS), and, for the first time, the auto - correlation functions of nonequilibrium system of particle structure are measured to study the ER mechanism. Structure response time and force response time are obtained for glass beads ER fluid, and the time variation of characteristic decay times of system correlation functions under different electric fields is also measured. Diffusing coefficients under different fields imply that the interaction is proportional to the square of fields.

Key words ER fluids, Interaction, Optical tweezers, Diffusing - wave spectroscopy

* Project supplied by the National Natural Science Foundation of China (No. 19834020).

** To whom correspondence should be addressed, Email: lwzhou@fudan.edu.cn