

TADEUSZ ZAKRZEWSKI

WPLYW ELEKTRONÓW ZEWNĘTRZNYCH NA PRZEWODNICTWO
CIECZY DIELEKTRYCZNYCH

Cz. I. Przegląd doświadczalnych metod badawczych

Streszczenie. W pracy opisano kilka oryginalnych metod pomiaru przewodnictwa elektrycznego cieczy wzbudzonego przez zewnętrzne źródło elektronów. Otrzymano szereg interesujących wyników eksperymentalnych, na podstawie których można wnioskować o generowaniu i przenoszeniu ładunków naładowanych w cieczach dielektrycznych. Wyniki te mogą stanowić podstawę do teoretycznego wyjaśnienia procesów fizycznych, zachodzących w cieczach dielektrycznych podczas przenoszenia ładunków przez ciecz.

Wstęp

W badaniach dotyczących przewodnictwa elektrycznego bardzo istotną rolę odgrywa czystość użytych do badań cieczy. Ciecze zanieczyszczone nie dają wyników jednoznacznych, są one zależne od rodzaju zanieczyszczeń oraz od ich stężenia. Z tego względu przewodnictwo jonowe cieczy dielektrycznych można podzielić na dwie grupy: a) przewodnictwo własne oraz b) przewodnictwo domieszek.

Przewodnictwo własne jest uwarunkowane ruchem jonów powstałych w wyniku dysocjacji podstawowych drobin cieczy. Przewodnictwo domieszek odgrywa bardzo ważną rolę we wszystkich technicznych cieczach jak np. olej transformatorowy. Istnieje szereg metod fizykochemicznych oczyszczania cieczy dielektrycznych.

Po dokładnym oczyszczeniu cieczy można otrzymać wartość granicznego przewodnictwa własnego cieczy niepolarnych rzędu $10^{-18} - 10^{-20} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ [1]. Wyniki otrzymane dla tak dokładnie oczyszczonych cieczy są powtarzalne i stanowią podstawę do wyjaśnienia mechanizmu przewodzenia prądu w cieczach dielektrycznych.

1. Oczyszczanie cieczy dielektrycznych

Jak już wspomiano, wyżej wartość przewodnictwa elektrycznego cieczy dielektrycznych zależy bardzo wyraźnie od stopnia ich czystości. Ciecze zakupione w zakładach Chemicznych nawet zaopatrzone atestem "czyste do analizy", wykazują przewodnictwo własne rzędu $10^{-10} - 10^{-13} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ i w stanie tym nie nadają się do badania przewodnictwa elektrycznego. Do najlepszych ciekłych dielektryków zalicza się ciecze grupy węglowodorów na-

syconych. Z uwagi, że ta grupa cieczy została również bardzo gruntownie zbadana, opiszę dokładniej metodę jej oczyszczania. Ciecze te początkowo miesza się ze stężonym kwasem siarkowym, który powoduje strącenie węglowodorów nienasyconych w postaci żółtego osadu. Osad ten daje się łatwo oddzielić za pomocą rozdzielacza, z powodu znacznych różnic gęstości badanych cieczy oraz stężonego kwasu siarkowego. Czynność tę powtarza się tak długo aż kwas siarkowy po dokładnym wymieszaniu nie będzie dawał żółtego osadu, zachowując pierwotną przeźroczystość. Gdy to nastąpi płucze się daną ciecz wodą destylowaną, a następnie ługiem sodowym aż do całkowitego odkwaszenia, po czym usuwa się ług i kilka razy płucze się ciecz ponownie wodą destylowaną. Po tych zabiegach ciecz może zawierać znaczny stopień zanieczyszczeń elektrolitycznych, dlatego też należy ją teraz dokładnie wysuszyć.

Suszenie cieczy dokonuje się za pomocą metalicznego sodu, lub też za pomocą pięciotlenku fosforu, które zostają umieszczone wewnątrz cieczy przez kilka dni. Następnie ciecz zostaje przefiltrowana przez stosunkowo gęsty podwójny filtr Schotta i poddana kilkakrotnej destylacji frakcjonowanej, która usuwa ślady zanieczyszczeń i pozwala wydzielić odpowiednią frakcję w żądanych granicach temperatur wrzenia. Oprócz tej metody stosuje się w zależności od rodzaju cieczy metodę destylacji frakcjonowanej oraz różnego rodzaju specjalne metody oczyszczania odmienne dla różnych cieczy [2].

Końcowym procesem oczyszczania cieczy jest tak zwane oczyszczanie elektryczne, polegające na umieszczeniu próbki badanej cieczy w stałym polu elektrycznym przez okres kilkudziesięciu godzin. Oczyszczanie to odbywa się już zwykle w samej komorze pomiarowej, także nie następuje to żadnych trudności. Ciecz poddana działaniu pola elektrycznego zmniejsza w ciągu kilkudziesięciu godzin swoją wartość przewodnictwa nawet o kilka rzędów wielkości. Po tego rodzaju oczyszczeniu ciecz nie wraca do początkowej wartości przewodnictwa, nie wykazuje również zjawiska polaryzacji, także ma miejsce symetria ładunków obu znaków zbieranych na elektrodzie zbiorczej komory. Szybkość z jaką maleje prąd w komorze po przyłożeniu napięcia elektrycznego, jak również jego końcowa wartość wskazują na to czy ciecz jest dobrze oczyszczona i czy można ją użyć do dokładnych pomiarów.

Mechanizm takiego oczyszczania nie jest jeszcze dokładnie poznany. Przypuszcza się, że próbka cieczy otrzymana bezpośrednio z destylacji może zawierać jeszcze nieznaczne ilości zanieczyszczeń elektrolitycznych, pęcherzyki powietrza i tlenu, jak również pęcherzyki pary tej samej cieczy. Należy także podkreślić, że i sama komora może zawierać wyżej wymienione składniki lub też dodatkowo może zawierać także jeszcze innego typu zanieczyszczenia. Z tego powodu dużą rolę odgrywa dokładnie oczyszczenie samej komory jonizacyjnej.

Poza samym problemem oczyszczania elektrycznego cieczy, należy jeszcze uwzględnić te zjawiska, które wynikają ze struktury drobin cieczy, a które również wpływają na mechanizm przewodzenia prądu elektrycznego. Duża róż-

nica pod tym względem występuje między węglowodorami nasyconymi a węglowodorami aromatycznymi, w których występują zdelokalizowane w drobinie elektrony π .

Węglowodory nasycone po dokładnym oczyszczeniu elektrycznym posiadają przewodnictwo elektryczne rzędu $10^{-18} - 10^{-20} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$, podczas gdy węglowodory aromatyczne po podobnych zabiegach oczyszczania wykazują przewodnictwo własne około 10^4 razy większe.

2. Prąd elektryczny w cieczach dielektrycznych

Próbkę cieczy dielektrycznej dokładnie oczyszczoną wlewa się do naczynia, stanowiącego rodzaj kondensatora elektrycznego (komora jonizacyjna) i przykładając stałe napięcie rzędu 2000 - 10000 V z baterii akumulatorów lub z zasilającego układu elektronowego.

Pomiary natężenia prądu przeprowadza się za pomocą najczulszych elektrometrów elektronowych. Dużą liczbę prac w dziedzinie przewodnictwa naturalnego przeprowadził Forster [4,5], który wyprowadził szereg ciekawych wniosków dotyczących mechanizmu przewodzenia elektrycznego w badanych cieczach, głównie węglowodorów nasyconych.

Wg Forstera przewodnictwo własne składa się z dwóch różnych procesów: przewodnictwa elektronowego σ_e i przewodnictwa wywołanego drobinami wzbudzonymi σ_w . Pierwszy z tych procesów polega na przeskakiwaniu elektronu swobodnego z jednej drobin na drugą, gdzie zostaje on zatrzymany przez pewien krótki okres czasu (pułapkowy model przewodzenia), drugi z tych procesów jest oparty na hipotezie, że w cieczy w temperaturze pokojowej istnieje niewielka ściśle określona liczba drobin wzbudzonych do najniższego stanu wzbudzenia. Drobin tego rodzaju mogą spowodować podczas zdezerowania powstanie pary jonów dodatniego i ujemnego.

Oprócz wymienionych wyżej zjawisk, za przyczynę przewodnictwa naturalnego uważa się następujące przyczyny:

- a) emisję elektronową z katody uwarunkowaną przyłożonym polem elektrycznym,
- b) wpływ śladowych zanieczyszczeń elektrolitycznych pozostających jeszcze w cieczy,
- c) dysocjację obcych substancji śladowych, znajdujących się jeszcze w cieczy,
- d) dysocjację drobin własnych pod wpływem pola elektrycznego,
- e) wpływ jonizacyjny promieni kosmicznych,
- f) wpływ jonizacyjny zanieczyszczeń promieniotwórczych, mogących występować w ściankach naczynia lub w powietrzu.

Każda z tych przyczyn może odgrywać znaczną rolę w odpowiednich warunkach eksperymentalnych, np. w przypadku dużych natężeń pól elektrycznych można łatwo stwierdzić wpływ emisji elektronów z katody.

Teoria przewodnictwa własnego nie została jeszcze dokładnie opracowana przede wszystkim ze względu na trudności doświadczalne związane głównie z trudnościami w pomiarach bardzo małych prądów elektrycznych rzędu 10^{-15} - 10^{-16} A płynących wówczas przez ciecz.

Badania prowadzone nad przewodnictwem jonizacyjnym ciekłych dielektryków nie stanowią już tak dużych trudności doświadczalnych jak w przypadku przewodnictwa własnego. Wzrost prądu w cieczy bardzo czystej może dochodzić do setek tysięcy razy (np. podczas jonizacji promieniami X) i natychmiast zanikać po usunięciu źródła jonizacji. Mierzone efekty są w tym przypadku dokładnie powtarzalne, co nie powoduje dużych rozbieżności w wynikach prac różnych autorów. Jednak i w tym zakresie badań istnieje szereg podstawowych procesów nie posiadających dokładnej interpretacji teoretycznej. Porównując charakterystyki prądowo-napięciowe w gazach i cieczach dielektrycznych można stwierdzić istotną różnicę polegającą na tym, że w cieczach brak jest całkowitego nasycenia prądu w silniejszych polach elektrycznych.

Obserwuje się wówczas liniowy wzrost prądu ze wzrostem natężenia pola. Dla przewodnictwa elektrycznego w słabych polach charakterystycznymi współczynnikami są: ruchliwość, rekombinacja oraz dyfuzje jonów. W ostatnich latach wykonano szereg prac mających na celu wyjaśnienie przebiegu charakterystyk prądowo-napięciowych w cieczach dielektrycznych jonizowanych promieniowaniem X, γ , o różnej energii i w różnych warunkach doświadczalnych, stosując również jako źródło jonizacji fotoemisję z katody zanurzonej do cieczy. Na podstawie tych badań stwierdzono, że dalszy wzrost prądu w obszarze pozornego nasycenia jest dokładnie liniowy aż do pól rzędu 300 kV/cm [6,7] zarówno dla promieniowania X jak i γ , a także w przypadku fotoprądów. Badając ruchliwość jonów w całej grupie C_nH_{2n+2} w miarę wzrostu grup CH_2 w cząsteczce węglowodoru Adamczewski stwierdził, że ruchliwości tych jonów systematycznie maleją [8,9], tzn. maleją w miarę wzrostu takich wielkości jak gęstość, lepkość, temperatura wrzenia itd. I. Adamczewski ustalił, że dla grupy węglowodorów nasyconych zależność pomiędzy ruchliwością jonów, a lepkością cieczy można przedstawić wzorem:

$$u = A \cdot \eta^{-\frac{3}{2}},$$

gdzie A jest pewną stałą nieznacznie różna dla jonów dodatnich i ujemnych

Na podstawie pomiarów rekombinacji wykonanych przez Adamczewskiego [3] okazało się, że współczynniki rekombinacji wykazują zupełnie analogiczną zależność od lepkości, jak współczynniki ruchliwości, czyli w tym przypadku słuszny jest wzór

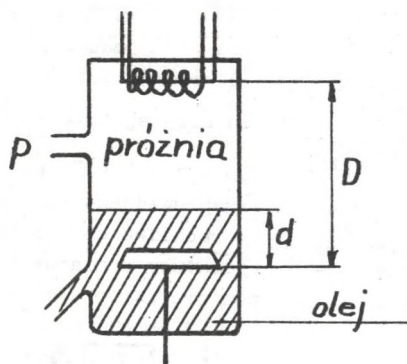
$$\alpha = B \cdot \eta^{-\frac{3}{2}},$$

gdzie stała $B = 3 \cdot 10^{-4}$.

Przeprowadzone pomiary pozwoliły wyciągnąć szereg interesujących wniosków dotyczących samego wytwarzania nośników w cieczach, jak również ich udziału w prądzie przewodzenia. Zagadnienia tego typu stanowią podstawę do zastosowania ciekłego dielektryka w dozymetrii promieniowania jonizującego, zwłaszcza gdy chodzi o duże energie tego promieniowania. Problem ten był tematem wcześniejszej pracy autora [10].

3. Wpływ elektronów termoemisji

Ciekawą i oryginalną metodę badania przewodnictwa elektrycznego w nieprzewodzących olejach zaproponował Sato i współpracownicy [11].



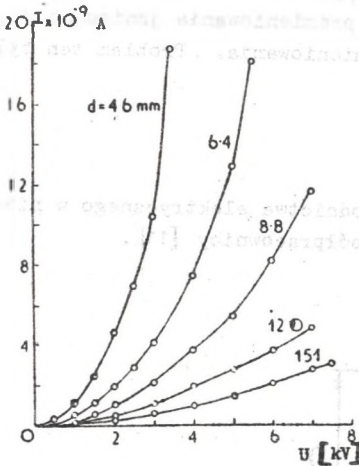
Rys. 1. Układ do pomiaru przewodnictwa elektrycznego wzbudzonego przez elektrony zewnętrzne

Do badania zjawisk prądowych użyto rozżarzonego włókna wolframowego spełniającego rolę katody warunkującej emisję elektronów w próżniowej aparaturze pomiarowej. Cała komora pomiarowa składała się zasadniczo z dwóch części, z których górna stanowiła działło elektronowe, a dolna elektrodę zbierającą nad którą znajdowała się warstwa cieczy (rys. 1). Do badania zastosowano olej transformatorowy, który był uprzednio filtrowany przez szklane filtry (celem wyeliminowania pyłków).

Elektrony termoemisji emitowane z włókna wolframowego były następnie przyspieszane przez pole elektryczne w próżni i osiągały powierzchnię cieczy bez przeszkód. W przypadku znacznego napięcia przyspieszającego daje się zaobserwować znaczny wzrost prądu przewodzenia. Rys. 2 przedstawia otrzymane charakterystyki prądowo-napięciowe przy różnych wartościach parametru d . Na podstawie otrzymanych wyników można wnioskować, że prądy indukowane w oleju zależą zasadniczo od natężenia pola w oleju, a w nieznacznym tylko stopniu od natężenia pola w przestrzeni próżniowej. Auto-

rzy przypuszczają, że ujemne jony są tworzone przez przyłączenie elektronów do molekuł cieczy zgrupowanych w pobliżu powierzchni oleju, co powoduje

znaczący wzrost przewodnictwa jonowego. Stwierdzono również znaczny wpływ ładunku przestrzennego na wartość przewodnictwa elektrycznego, gęstość badanego prądu jest dość dobrze określona przez równanie:



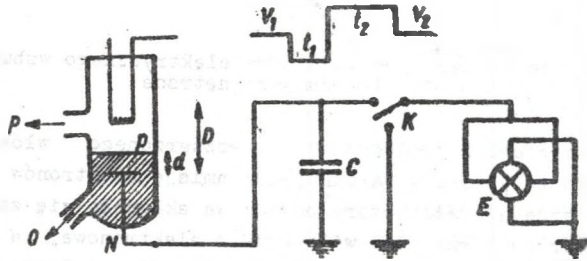
$$j = \frac{9 \epsilon u V^2}{32 \pi d^3}, \quad 3.1$$

gdzie ϵ - oznacza stałą dielektryczną oleju, u - ruchliwość powstałych jonów, V - przyłożone napięcie.

Obliczenie wartości ruchliwości z nachylenia krzywej $I=f\left(\frac{V^2}{d^3}\right)$ leżą w przedziale $0,6 - 1,1 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2 \text{ sek}^{-1} \text{ v}^{-1}$.

Rys. 2. Charakterystyki prądowo-napięciowe, przy różnych wartościach odległości d . Ciśnienie nad cieczą wynosiło $1-2 \cdot 10^{-3}$ Tr.

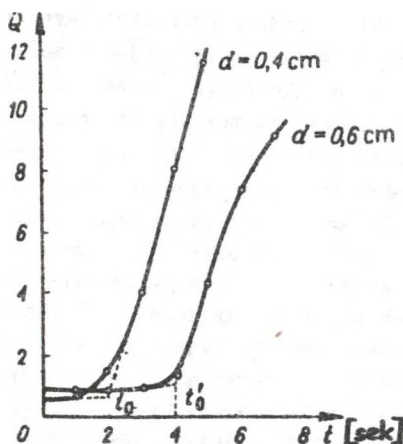
Przeprowadzono również bezpośrednie pomiary ruchliwości nośników ujemnych, schemat aparatury pomiarowej pokazuje rys. 3. Do pomiaru użyto ujemnego prostokątnego im-



Rys. 3. Schemat układu do bezpośrednich pomiarów ruchliwości

pulsu napięcia V_1 o długości t_1 , następującego na przemian z impulsem dodatnim V_2 o długości t_2 .

Ładunek gromadzony na kondensatorze był mierzony elektrometrem E. Celem drugiego impulsu napięciowego jest usunięcie pozostałych jonów w oleju, a zatem zapobieganie wytwarzaniu ładunków indukowanych na anodzie. Na podstawie wykresu zależności zebranego ładunku Q od czasu zbierania t dla dwóch różnych wysokości warstwy oleju d rys. 4, wyznaczono czas przejścia t_0 jonów danej warstwy cieczy.

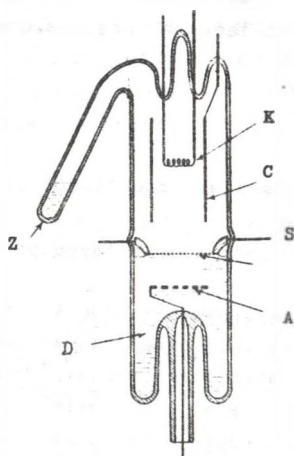


Rys. 4. Zależność zebranego ładunku Q jonów od czasu zbierania t

Ruchliwość nośników wyznaczono ze wzoru

$$d = \frac{t_0 V u}{d}$$

Na wartości ruchliwości otrzymano $u = 1.1 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2 \text{ sek}^{-1} \text{ V}^{-1}$, co uważano za wynik zgodny z innymi pracami.



Rys. 5. Schemat triody dwufazowej

Oznaczenia: K - katoda,
C - cylinder Wehnelta,
A - elektroda zbiorcza,
D - ciekły dielektryk,
Z - zbiornik cieczy

Reasumując, można stwierdzić fakt ograniczenia przewodnictwa elektrycznego przez ładunek przestrzenny jaki tworzą jony ujemne. Wniosek ten wydaje się dosyć pewny, natomiast do pozostałych wyników należy podchodzić z dużą ostrożnością. Używany do badania olej transformatorowy był tylko czyszczony mechanicznie i aby otrzymać wyraźny wzrost prądu generowanego w takiej cieczy należy stosować znaczną gęstość prądu elektronowego termoemisji. Choć nie została podana wartość przewodnictwa naturalnego oleju transformatorowego, to z innych źródeł [12] wiadomo, że wynosi ona po samym oczyszczeniu mechanicznym $10^{-10} - 10^{-12} \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$, a jak wspomniano wyżej, w cieczach takich dużą rolę odgrywają różne domieszki, które mogą mieć charakter elektrolityczny, co powoduje nałożenie efektów. Również istotny wpływ ma tutaj niejednorodność pola elektrycznego w samej komorze pomiarowej. Ze względu

na znaczną niedoskonałość próżni (ciśnienie wynosiło około $1 - 2 \cdot 10^{-3}$ Tr), miał tu miejsce pewien spadek napięcia już w samej przestrzeni próżniowej co nie zostało również uwzględnione. Także nie bez znaczenia na otrzymane wyniki jest tu fakt ogrzewania powierzchni cieczy przez spiralę emitującą elektrony, jak również przez same elektrony termoeemisji, co szczególnie odgrywa dużą rolę przy dużych gęstościach prądu elektronowego. Dlatego otrzymana z tych pomiarów wartość ruchliwości oraz jej zgodność z pomiarami przeprowadzonymi przez Adamczewskiego wydaje się dosyć przypadkowa. P. Secker i współpracownicy [13] zmodyfikowali nieco tę metodę badania przewodnictwa wprowadzając między katodę a elektrodę zbiorczą siatkę sterującą, przy czym elektroda zbierająca posiadała szereg otworów (rys. 5). Odległość między siatką a elektrodą zbierającą wynosiła 1 cm. Trioda normalnie działała z siatką uziemioną, wysokiego napięcie jest przyłożone między elektrodę zbiorczą a siatką. Do badania użyto cieczy silikonowych o lepkości 10, 3 i 1,5 cs oraz olej transformatorowy, ciecze te były dokładnie filtrowane przed ich użyciem. Elektrony emitowane przez włókno wolframowe biegają w kierunku swobodnej powierzchni cieczy, która poziomem swym sięga do siatki S. W zależności od napięcia na siatce sterującej elektrony mogą być odpychane od powierzchni cieczy lub też wprowadzone do cieczy. Elektrony wprowadzone do cieczy są wyłapywane przez jej molekuly i tworzą w ten sposób nośniki o małej ruchliwości, wówczas daje się zaobserwować ładunek przestrzenny ograniczający przepływ prądu między siatką i anodą. Nośniki ładunku ciągle zderzają się z naturalnymi molekułami cieczy, wynikający stąd pęd przenoszenia daje wzrost ruchu masy cieczy w kierunku ruchu ładunku. Zatem rzeczywista prędkość ładunku przenoszonego przez ciecze jest określona przez równanie:

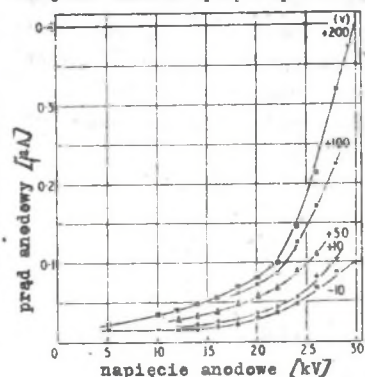
$$V_x = V_1 + u \cdot E, \quad 3.2$$

gdzie V_1 - oznacza prędkość masy cieczy, u - rzeczywistą ruchliwość ładunku, E - lokalne natężenie pola elektrycznego.

Rys. 6 przedstawia charakterystyki prądowo-napięciowe przy różnych potencjałach siatki, dla cieczy silikonowej o lepkości 10 cs.

Zaobserwowano, że przy wzroście napięcia siatkowego powyżej 200 V nie otrzymano znacznego wzrostu prądu w badanych cieczech. Można stąd wnioskować o wpływie ładunku przestrzennego na wartość mierzzonego prądu. Naczynie triodowe było poddawane wysokim napięciom anodowym w szerokim zakresie zmian i w tych warunkach obserwowano bardzo szybkie krążenie masy cieczy, co przeszkadzało, w ustaleniu się stałego przewodnictwa oraz wywoływało niekiedy przebicia. Ustalono, że wartość prądu przewodzenia, w przypadku gdy naczynie pracowało przy ujemnym potencjale siatki, silnie zależała od stopnia czystości użytych cieczy. Na podstawie przeprowadzonych pomiarów ustalono ponadto, że ruchliwość ładunku jest odwrotnie pro-

porcjonalna do lepkości cieczy. Ze zmniejszeniem lepkości cieczy miał miejsce wzrost prądu przewodnictwa dzięki równoczesnemu wzrostowi ruchu



Rys. 6. Zależność prądu anodowego od napięcia anodowego przy różnych potencjałach siatki sterującej

ładunku względem cieczy oraz dzięki zmniejszeniu lepkości samej cieczy w wyniku zmniejszenia całkowitego oporu hydrodynamicznego. Stosowanie anody (elektrody-zbiorniczej) z otworami, pomogąło zebraniu ładunku dzięki współkierunkowemu przepływowi zarówno ładunku przenieszonego, jak również samej cieczy.

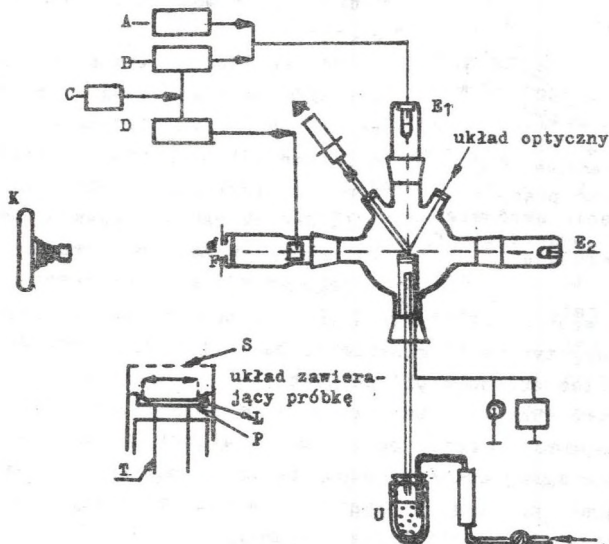
Również praca ta nie spełnia szeregu warunków omawianych na początku, które są konieczne aby otrzymane wyniki były odzwierciedleniem reakcji właściwego środowiska ciekłego z elektronami termoemisji. Jednak za najciekawszy wynik tej pracy należy uważać obserwowany ruch cieczy i jego wpływ na ruchliwość co zostało u-

względnione we wzorze 3.2. Spear [14] opracował metodę wstrzykiwania elektronów niskoenergetycznych, głównie do badania czasu przejścia nośników generowanych w ten sposób w próbce cieczy.

Fischer [15] wykorzystał do badania przewodnictwa urządzenie lampy telewizyjnej, co zapewniało ostre ogniskowanie wiązki, oraz znaczną jej gęstość. Wszystkie wyżej opisane metody można by nazwać konwencjonalnymi. Charakteryzują się one tym, że występują w nich dwie podstawowe elektrody z których jedna spełnia rolę "przyspieszacza" elektronów, a druga analizuje prądy generowane w ciekłym dielektryku. Inną różniącą od metod konwencjonalnych, jest metoda wstrzykiwania elektronów, w której rolę jednej z elektrod spełnia drgający strumień elektronowy. Metoda ta została przez Watsona i Clancy [16] zastosowana do badania procesów przewodnictwa elektrycznego cieczy dielektrycznych. Do określenia przewodnictwa elektrycznego dielektryków, koniecznym jest znać wartość prądu płynącego przez próbkę, różnicę potencjałów oraz wymiary samej próbki. W przypadku metod konwencjonalnych pomiary te były wykonywane bezpośrednio na elektrodach komory pomiarowej. Jednak gdy katoda jest źródłem emisji elektronów, wtedy rzeczywisty pomiar napięcia na próbce (bez użycia siatki) jest w przypadku użycia jednego działła elektronowego niemożliwy.

Aby jednak bezpośrednio wyznaczyć napięcie na próbce, metodę stosowano, wykorzystując komórkę Kerra [17] lub też metodę elektrostatyczną [18]. Otrzymane wyniki były jednak obarczone dużym błędem. Oryginalnością metody użytej przez Watsona i Clancy [19] było użycie dwóch strumieni elektronów, z których pierwszy prostopadły do powierzchni próbki spełnił tę samą rolę co w komorach konwencjonalnych, a drugi równoległy do powierzchni

próbki służył jako miernik potencjału jej powierzchni. Zasadę działania tej metody pokazuje rys. 7. Górny strumień elektronowy powoduje wytworzenie nośników elektrycznych w ciekłym dielektryku, natomiast otrzymuje się oporność $1,1 \cdot 10^{-13} \Omega \text{ cm}$. Dla gęstości prądu większej od $2 \cdot 10^{-10} \text{ A/cm}^2$ przewodność próbki nie jest już liniowa i tak np. dla gęstości 10^{-8} A/cm^2 oporność spada do wartości $1,5 \cdot 10^{12} \Omega \text{ cm}$ i odchylenie od prawa Ohma jest związane z ładunkiem przestrzennym występującym w próbce.



Rys. 7. Schemat blokowy aparatury pomiarowej

Oznaczenia: A - zasilacz prądowy, B - zasilacz ładunkowy, C - generator impulsów synchronizacji, D - pozioma podstawa czasu, F - ekran fluoryzujący, K - kamera, E_1, E_2 - działa elektronowe, U - układ chłodzący, S - siatka, L - ciecz, P - przewodząca warstwa tlenku cynku, T - czujnik temperatury

Można również było wyznaczyć czas przejścia ładunków przez badaną próbkę na podstawie badania zaniku ładunku w próbce. W obszarze stosowalności prawa Ohma krzywa zaniku jest eksponencjalna, ze stałą czasu określoną wzorem:

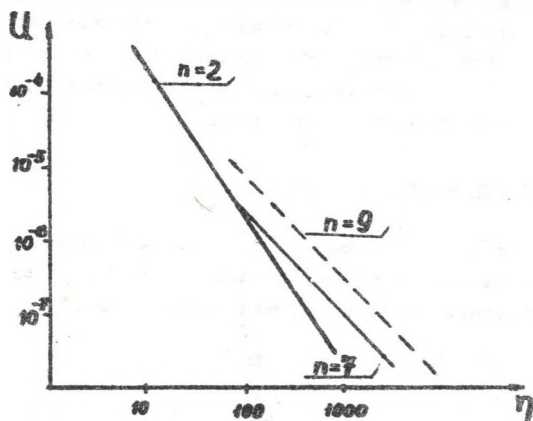
$$\tau = \frac{\rho \epsilon}{4\pi},$$

3.3

gdzie ρ - oznacza oporność elektryczną mierzoną w układzie CGS,
 ϵ - stała dielektryczna.

Ruchliwości nośników ładunku zostały wykreślone w funkcji lepkości cieczy w przypadku siloksanów metylo-fenylowych, co zostało pokazane na rys. 8.

Z otrzymanych wartości ruchliwości wydaje się, że są one za małe jak na wolne elektrony, można zatem przypuszczać, że nośnikiem ładunku jest jon



Rys. 8. Zależność ruchliwości ładunków ujemnych od lepkości badanych cieczy z szeregu siloksanów metylo-fenylowych

ujemny, co pozwala przypuszczać, że wstrzykiwane elektrony przyłączają się do molekuł cieczy, podczas ich ruchu przez ciecz lub też mogą one być podczas ruchu wiele razy wyłapywane i termicznie uwalniane przez molekuły cieczy. Stwierdzone, że ruchliwości są zależne od lepkości cieczy i spełniają związek:

$$u = k \frac{1}{\eta^n}$$

3.4

gdzie k - jest pewną stałą.

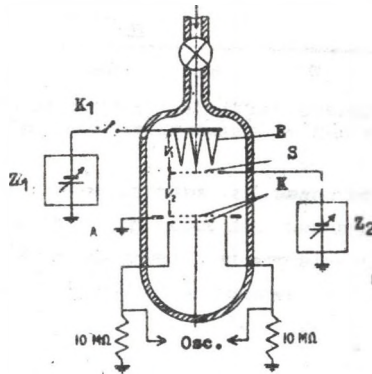
Dla trzech badanych cieczy wartości n są zawarte w przedziale 1,07 - 1,37. Jak jest widoczne, wartości te znacznie różnią się od jedności, co świadczy o tym, że prawo Waldena nie jest spełnione.

Należy jednak mieć tutaj na uwadze fakt, że w pomiarze przewodnictwa wpływ względnie powolnych nośników może być maskowany przez szybkie nośniki. Z tego wynika, że kilka spośród wstrzykiwanych elektronów może przejść szybko przez ciecz jako wolne elektrony, podczas gdy inne są wyłapywane i przesuwają się wolno jako jony ujemne. Ulepszając nieco technikę wstrzykiwania elektronów do ciekłego środowiska można by otrzymać w ten sposób efektywną metodę pomiaru wydajności wychwytu elektronów przez materiał. Eksperyment taki polegałby na pomiarze wzrostu napięcia na powierzchni cieczy, uwarunkowanego dzięki wstrzykiwanym impulsom elektronowym i jego porównaniu ze wzrostem potencjału obliczonego z gęstości wstrzykiwanego ładunku oraz grubości próbki cieczy.

Obliczony stąd wzrost napięcia dla całkowitego wychwytu różni się w granicach 5% od zmierzonej wartości średniej. Reasumując można stwierdzić że w prądzie przewodnictwa indukowanego elektronami termoemisji nie ma wyraźnej składowej elektronowej. Przypuszcza się, że większość elektronów jest wychwycona blisko głębokości ich przenikania i powstałe w ten sposób jony biorą udział w prądzie przewodzenia.

4. Wpływ elektronów emisji polowej

Secker i Essex [20] zastosowali do badania zachowania się nośników ujemnych w heksanie prostą diodę, składającą się z precyzyjnej siatki oczkowej oraz ostrzonego emitera polowego (rys. 9).



Rys. 9. Schemat komory pomiarowej do badania ruchliwości nośników ujemnych

Oznaczenia: Z_1, Z_2 - zasilacze, E - emiter polowy, S - siatka wstrzykująca, K - kolektor siatkowy, K_1 - przełącznik

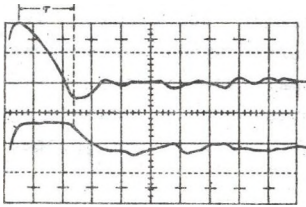
Układ destylacyjny był połączony z komorą przez filtr Schotta, woda z badanej cieczy była usuwana przez dodanie sodu, zaś rozpuszczone gazy były wydalone przez odpompowanie w niskiej temperaturze przy ciśnieniu 10^{-2} Tr, po tym procesie ciecz destylowano do komory pomiarowej.

Siatki określające obszar dryfu były odległe od siebie o 8 mm, podczas gdy odległość siatek kolektorowych wynosiła 0,1 mm. Gdy przełącznik wysokiego napięcia K_1 jest włączony, wtedy ładunki z ostrzy poruszają się do siatki wstrzykującej (siatka sterująca).

W wyniku indukowanego ruchu cieczy, około 30% ładunku zostaje wprowadzone do komory dryfowej i porusza się do górnej siatki kolektorowej pod wpływem pola elektrycznego. Stała czasowa obwodu pomiarowego jest bardzo mała w porównaniu z czasem przejścia ładunku przez komorę dryfu.

Tak więc sygnał posyłany na lampę oscyloskopu katodowego jest dokładnie proporcjonalny do ładunku poruszającego się do siatki kolektorowej.

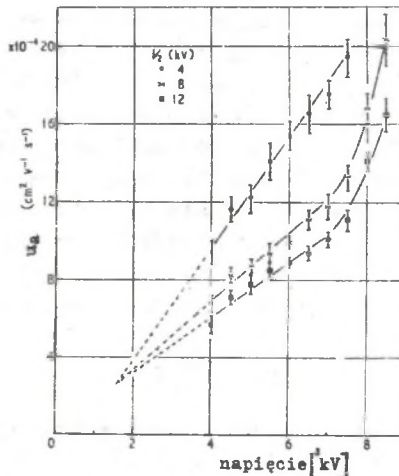
W przypadku idealnym, charakterystyka zdjęta z siatki górnej podczas pomiaru, winna być impulsem prostokątnym z dokładnie określonymi zboczami, jednak jak się często zdarza, prąd ładunku przy kolektorze może być rozmyty, co utrudnia wyznaczenie czasu przejścia. Dlatego należy uwzględnić jeszcze charakterystykę odpowiadającą ładunkowi, który przedostał się między siatki kolektora. Typowy oscylogram przedstawia rys. 10.



Rys. 10. Przebiegi oscylograficzne ruchu jonów. Górny przebieg przedstawia ładunek poruszający się w kierunku morza dryfu, dolny pochodzi od ładunku poruszającego się między siatkami kolektora

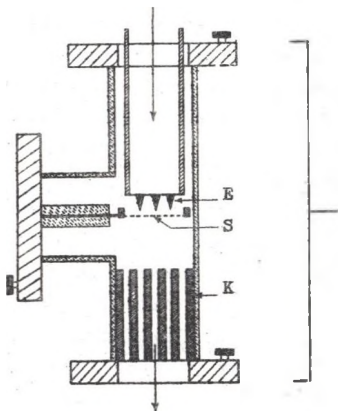
Czas przejścia mierzono między załamaniem górnego i dolnego przebiegu, ruchliwość wyznaczano ze wzoru $u = d/E \cdot e$. W przeprowadzonych badaniach zwrócono uwagę na błędy wynikające z nieuwzględnienia ruchu masy cieczy. Pomiary przeprowadzone przez Lewisa [21], oparte głównie na zdjęciach filmowych wstrzykiwanych cząstek barwionych, pokazały że prąd $6 \cdot 10^{-11}$ A wywołuje wzrost ruchu masy cieczy do prędkości tego samego rzędu co posiadają same ładunki. Intensywność ruchu całej cieczy znacznie zależała od warunków eksperymentalnych i faktem tym należy tłumaczyć pewne rozbieżności w cytowanych wynikach doświadczalnych.

Technika impulsowa, stosowana w większości prac dotyczących pomiarów ruchliwości, daje niższe wartości niż otrzymane metodą gromadzenia ładunków. Dlatego wartości ruchliwości obliczone z pomiarów czasów przejścia, nie uwzględniające indukowanego ruchu cieczy, muszą być brane z pewną ostrożnością, szczególnie dla mocy większych od 10^{-11} W. Dlatego należy rozróżnić ruchliwości mierzone względem elektrod (apparent mobility) u_a oraz ruchliwości względem samej cieczy (true mobility) u_t .



Rys. 11. Zmiana u_a w funkcji napięcia przyłożonego do diody wstrzykującej

Wstępne pomiary u_a dawały dosyć rozbieżne wyniki. Stwierdzono że czas przejścia ładunku jest zależny od uprzednio przeprowadzonych pomiarów, szczególnie ważny okazał się tu odstęp czasu między poszczególnymi pomiarami. Wzrost odstępu czasu od 1 sek do 19 godzin (czas napromieniowania wynosił 15 sek) powodował zmianę u_a o czynnik większy od 3. Przypuszcza się, że zmiana u_a w funkcji odstępu czasu jest związana z dyfuzją ładunku od ostrzy emitujących do siatki wstrzykującej. Również ważny w tych pomiarach okazał się nie tylko czas oczekiwania między pomiarami, lecz również czas poprzedzającego przewodzenia. Aby rozrzut wyników zredukować do minimum, konieczne jest ściśle przestrzeganie warunków pracy, w których komora pracuje w okresie przewodzenia i nieprzewodzenia. Okazało się że minimalny rozrzut występuje dla czasu przewodzenia 2 sek. następującego po czasie 30 sek.



Rys. 12. Schemat ciekowego generatora elektrostatycznego

Oznaczenia: E - emitery polowy, S - siatka sterująca, K - kolektor jonów

trycznego, jak i izolatora. Budowę ciekowego generatora przedstawia rys. 12. Ładunki były wstrzykiwane w płynący strumień cieczy i odgrywane następnie przy elektrodzie zbiorczej. Prędkość przepływu cieczy w układzie cyrkulacyjnym wynosiła 0,5 m/sek.

Maksymalne napięcie wyjściowe jest określone równaniem:

$$V_{\max} = \frac{V_c \cdot d}{u},$$

4.1

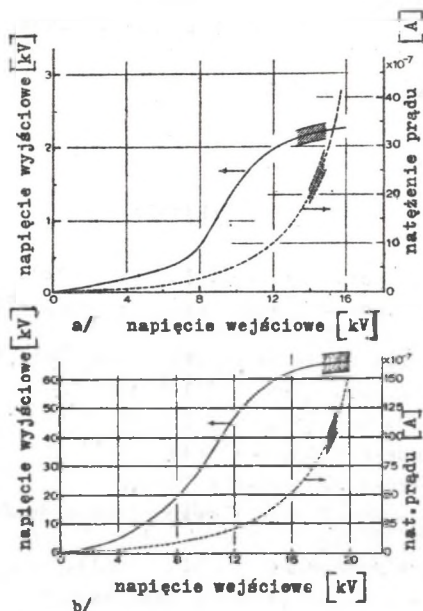
gdzie d - oznacza odległość między układem wstrzykującym, a kolektorem. Kolektor składa się z korka mosiężnego, przez który przewiercono 40 otworów o średnicy 1/16 cala. Znajduje się on w odległości 3 cm od siatki.

Rys. 11 przedstawia serie wartości u_a otrzymanych tym sposobem. Każdy pomiar reprezentuje średnią 50 odczytów. Na podstawie charakterystyki prądowo-napięciowej diody wstrzykującej wyznaczono napięcie odcięcie równe 1,6 kV.

Przez ekstrapolację wyznaczono z rys. 11 ruchliwość dla tej wartości napięcia, która wynosiła $2,7 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ sek}^{-1}$. Reasumując można wnioskować, że prędkość ujemnych nośników w heksanie zależy od indukowanego ruchu cieczy. Zmiana wstrzykiwanego ładunku powoduje zmianę wartości u_a przy stałym polu w komorze.

Hughes i Secker [22] do badania przewodnictwa zastosowali generator elektrostatyczny z emisją polową, który pozwalał na otrzymanie napięcia do 70 kV. Ciecz dielektryczna jest pompowana w układzie zamkniętym i spełnia rolę zarówno transportera ładunku elek-

Wzbudzony ruch cieczy powoduje, że pewne nośniki ładunku przechodzą przez siatkę w kierunku elektrody zbiorczej. Rys. 13 pokazuje zależność napięcia generowanego na kolektorze oraz prądu wytworzonego przez emiter polo-



Rys. 13. Zależność napięcia generowanego oraz prądu w funkcji napięcia wejściowego

a) bez pompowania heksanu, b) dla pompowania z prędkością 0,5 m/sek. Części zakreskowane oznaczają rozrzut wyników

wy w funkcji napięcia wejściowego siatka-emiter. Z rys. 13 łatwo zauważyć że gdy heksan jest pompowany przez generator, prąd efektywny zbierany na kolektorze wzrastał 5 razy w stosunku do przypadku gdy nie było pompowania. Również jest widoczne, że ze wzrostem napięcia emiter-siatka, prąd wzrasta w sposób eksponencjalny, natomiast napięcie generowane na kolektorze zdąża do pewnej granicy, zgodnie ze wzorem 4.1. Porównanie prądu emisyjnego z prądem generowanym w obwodzie kolektora wskazuje, że tylko 13% ładunku przechodzi przez siatkę. Stwierdzono również znaczny wpływ zanieczyszczeń na wartość mierzonych prądów, co może niejednokrotnie powodować wypaczenie otrzymanych wyników. Opisane metody badania przewodnictwa elektrycznego mają na celu wyjaśnienie procesów generowania i przeniesienia nośników naładowanych przez ciekły dielektryk i uzupełniają one analogiczne badania, w których czynnikiem jonizującym jest promieniowanie elektromagnetyczne czy też jądrowe. Mimo przeprowadzenia dużej liczby prac doświadczalnych, brak jest jednolitej teorii, tłumaczącej mechanizm przewodzenia w ciekłych dielektrykach. Dlatego problem ten jest nadal aktualny i wymaga dalszych badań. Opisane wyżej metody, polegające na wstrzyki-

waniu elektronów, są bardzo istotne z uwagi na przypisywanie elektronom coraz większego znaczenia w procesie przewodnictwa. Dlatego ostatnio wzrasta zainteresowanie tymi metodami i ukazuje się coraz więcej prac dotyczących roli elektronu swobodnego w procesie przewodzenia.

Wpłynęło do Redakcji 10.5.72 r.

LITERATURA

1. I. Adamczewski - Acta Phys.Pol. 3, 235 (1934).
2. I. Adamczewski - Jonizacja i przewodnictwo ciekłych dielektryków, PWN W-wa (1965).
3. A. Nikaradse - Das flüssige Dielektrikum, Berlin (1934).
4. E.O. Forster - J.Chem.Phys. 37, 1021 (1962).
5. E.O. Forster - J.Chem.Phys. 40, 86, 91 (1964).
6. B. Jachym - Praca doktorska (1964).
7. J. Terlecki - Praca doktorska (1961).
8. I. Adamczewski - Ruchliwość i rekombinacja jonów w cieczach dielektrycznych, ANT (1936).
9. I. Adamczewski - Atompraxis 9, 327 (1961).
10. T. Zakrzewski - Postępy Techniki Jądrowej, 13, 1521 (1969).
11. T. Sato, S. Nagao, Y. Toriyama - Brit.J.Appl.Phys. 7, 297 (1956).
12. G. Skanawi - Fizyka dielektryków, Moskwa (1949).
13. P. Secker, M. Jessup i F. Hughes - J.Scient.Instr. 43, 515 (1966).
14. W. Spear - Proc.Phys.Soc. (London) B 70, 669 (1957).
15. F. Fischer i H. Thiemann - Schweiz.Arch. Angew.Witt.Tech. 7, 1, (1941)
16. P. Watson - Brit.J.Appl.Phys. 199, 646, (1963).
17. D. Goodwin - Proc. Phys. Soc. 69, 61 (1956).
18. M. Woolf i G. Rayfield - Phys.Rev.Letters 15, 253 (1965).
19. P. Watson i T. Clancy - Rev.Scient.Inst. 36, 217 (1965).
20. V. Essex i P. Secker - Brit.J.Appl.Phys. 2, 1, (1968).
21. P. Secker i T. Lewis - Brit.J.Appl.Phys. 16, 1649 (1965).
22. J. Hughes i P. Secker - Elektromis Letters Vol. 2, 165 (1966).

ВЛИЯНИЕ ВНЕШНИХ ЭЛЕКТРОНОВ НА ПРОВОДИМОСТЬ
ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ЖИДКОСТЕЙ

г. 1. Обзор экспериментальных методов

Содержание

В работе описано несколько оригинальных методов измерений электрической проводимости жидкостей возбужденной внешним источником электронов. Получен ряд интересных экспериментальных результатов на основании которых можно судить о генерировании и переносе электрических зарядов в диэлектрических жидкостях. Эти результаты могут служить основой теоретического истолкования физических процессов вращающихся в диэлектрических жидкостях во время переноса зарядов через жидкость.

Zusammenfassung

In dieser Arbeit (Schrift) wurden einige originale Messmethoden der elektrischen Leitfähigkeit, durch eine äusserliche Elektronenquelle erregte, beschrieben. Es wurden eine ganze Reihe interessante experimentelle Ergebnisse erhalten, auf dessen Gründen man von dem erzeugen und übertragen der elektrischen Ladungen in dielektrischen Flüssigkeiten folgern kann.

Die Ergebnisse können einen Grund für theoretische Interpretation physikalischer Vorgänge, diese in dielektrischen Flüssigkeiten während Übertragen der elektrischen Ladung in der Flüssigkeit durchlaufen, bilden.

THE EFFECT EXTERNAL ELECTRONS ON THE CONDUCTIVITY OF DIELECTRIC
FLUIDS. I. THE REVIEW OF EXPERIMENTAL METHODS

S u m m a r y

The paper is attempted to give the description of several original methods of measurement of electrical conductivity of fluids, which is generated by the external source of electrons.

The results obtained in these experiments are interesting and give information about the generation and transport of charges particles in dielectric fluids. These results may establish the basis for theoretical explanation of physical processes involved in the movement of electrical charges in dielectric fluids.