

## DIAGRAMA DE FASES EN UN MEDIO GRANULAR ELECTROSTÁTICAMENTE EXCITADO

L. M. Salvatierra <sup>(1,2)</sup>, P. L. Dammig Quiña <sup>(1)</sup>, O. L. Cortes Bracho <sup>(1)</sup>,  
I. M. Irurzun <sup>(1)</sup> y E. E. Mola <sup>(1,2)</sup>

(1) Instituto de Investigaciones Físicoquímicas Teóricas y Aplicadas (INIFTA-CONICET), Facultad de Ciencias Exactas, Universidad Nacional de La Plata. Diagonal 113 y 64, CP (1900), La Plata, ARGENTINA.

(2) Facultad de Química e Ingeniería, Pontificia Universidad Católica Argentina. Mendoza y Río de Janeiro, CP (2000), Rosario, ARGENTINA.

E-mail (autores de contacto): lsalvatierra@inifta.unlp.edu.ar / uca.edu.ar; eemola@inifta.unlp.edu.ar

### RESUMEN

*En este artículo presentamos avances relevantes sobre el estudio de la dinámica de medios granulares excitados electrostáticamente reportados por los autores en [1]. Se mostró un nuevo y novedoso comportamiento de polvos inorgánicos, que bajo un intenso campo eléctrico alterno de frecuencia y amplitud controlada, forman estructuras de crecimiento cuya morfología depende de los valores de estas variables. Se pudo establecer un diagrama de fases en las condiciones de trabajo experimentales empleadas. A su vez, se muestra cómo estos comportamientos dependen de distintas poblaciones granulométricas.*

### Tópico 4: Materiales Cerámicos

**Palabras clave:** Medio Granular. Campo Eléctrico. Crecimiento de estructuras. Diagrama de Fases.

### 1. INTRODUCCIÓN

En el presente trabajo se presentan resultados sobre el estudio del comportamiento de polvos inorgánicos no conductores ante la aplicación de un elevado potencial eléctrico de frecuencia controlada variable.

La dinámica de agrupamientos de grandes números de partículas macroscópicas es hoy en día poco comprendida, más aún cuando están presentes interacciones fuertemente disipativas [1–4]. Los medios granulares poseen propiedades que son muy diferentes a las comúnmente asociadas con sólidos, líquidos o gases. Complicaciones adicionales surgen cuando las partículas son micrométricas y las fuerzas de contacto se vuelven dominantes. Si simultáneamente las partículas adquieren carga eléctrica, un nuevo tipo de dinámica aparece, la cual es gobernada por la competencia entre fuerzas electromagnéticas de largo alcance, la fuerza peso sobre cada una, y las fuerzas de contacto entre ellas de corto alcance. Ello posee relevante importancia en virtud de la aplicación tecnológica de sustancias en estado granular [5–8].

En los estudios de la dinámica de agregación, cuando las partículas se ponen en contacto con los electrodos de la celda, ellas adquieren una carga eléctrica. Las mismas permanecen inmóviles en el electrodo inferior, en un estado de fase precipitada hasta un valor de campo eléctrico que depende de la frecuencia. Si el campo en la celda lo excede, la fuerza ascendente resultante supera al peso de las partículas  $mg$ , y por ende genera un crecimiento de agregados en dirección al electrodo superior. Si el campo  $E$  se incrementa más aún, por encima de otro valor umbral dependiente de la frecuencia, las partículas adoptan una dinámica o fase similar a la de un gas.

Se reconocieron diferentes fases dependiendo de la intensidad del campo y de su frecuencia (i): fase gas granular; (ii) una zona de crecimiento y; (iii) un sólido granular precipitado. Basados en esta información experimental se propone un diagrama de fase para caracterizar el comportamiento dinámico del sistema y se muestra cierta dependencia con el tamaño de grano.

## 2. PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

El procedimiento experimental utilizado para el presente trabajo se sirve de un generador de señales cuya salida se amplifica en potencia y es enviada a un transformador de alta tensión modificado (HVT). Esta instalación experimental proporciona un control continuo de tensión de hasta más de 10kVpp, entre 500Hz y 6kHz. Por debajo de 500Hz, la tensión máxima alcanzable disminuye debido a limitaciones experimentales en el HVT.

Como dispositivo de medición, se utilizó una punta de alta tensión Tektronix P6015A de un ancho de banda de 75MHz y 40kVpp – 20 kVrms máximos, conectada a un osciloscopio Tektronix 1012B de 1GS/s y 100MHz, en línea a su vez con una computadora personal (PC).

La celda de ensayo consiste en dos electrodos de cobre de caras planas paralelas pulidas, de 5mm de diámetro. La celda esta dispuesta en forma vertical. El espacio entre las caras de los electrodos paralelos se controla micrométricamente entre 0 y 40mm con una precisión de 0,01mm.

El comportamiento dinámico del sistema granular es registrado por una video cámara digital de alta resolución (CCD) junto con un microscopio óptico 20X. El microscopio observa la celda horizontalmente.

La muestra de polvo que va a ser estudiada es dispuesta sobre el diámetro del electrodo inferior, en forma de línea, para que el crecimiento vertical de las estructuras se dé predominantemente de manera bidimensional (2D) [1].

El experimento comienza con la muestra ubicada como se describió anteriormente, registrando la imagen del estado inicial. Luego, a una frecuencia de campo determinada y a un espacio entre electrodos dado, el campo eléctrico se eleva a una velocidad constante, mientras se registra un video continuo en 30 cuadros por segundo (fps) y se monitorea y adquiere en tiempo real la forma de onda sobre la celda. Alcanzada la máxima tensión posible finaliza la corrida y se procede a apagar el sistema. Se limpia la celda y se coloca una nueva muestra. La secuencia de operación se repite nuevamente a diferentes frecuencias de campo. Para estos estudios utilizamos las siguientes frecuencias: 300Hz, 500Hz, 750Hz, 1kHz, 2kHz, 3kHz, 4kHz y 6kHz.

Se utilizaron muestras de 5mg de una sal compuesta: 55% de Monofosfato de Amonio ( $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ ) y 45% de Sulfato de Amonio ( $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ). La distribución granulométrica del fabricante se presenta en la Tabla 1. El espacio entre los electrodos fue de 4.13mm. Se trabajo a presión atmosférica (1atm) y a temperatura ambiente (25°C).

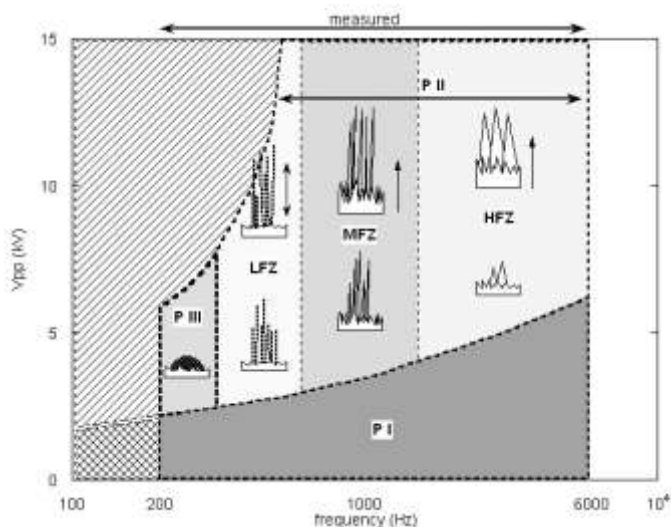
**Tabla 1.** Granulometría provista por el fabricante para una muestra sin tamizar.

Tamaño ( $\mu\text{m}$ )	%
425	0-3
150	0-6
75	18-30
45	45-52

## 3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En [1] fue reportado que del análisis de los videos obtenidos a cada frecuencia explorada, pueden observarse distintos comportamientos en cuanto a la dinámica de crecimiento y al nivel de agregación de las partículas. Cualitativamente pudieron ser distinguidas tres fases: (i) Fase I: correspondiente a un “sólido granular precipitado”, en donde no se observa movimiento aparente; (ii) Fase II: de crecimiento de estructuras formadas por la agregación electrostática de partículas,

observada a voltajes más altos que la fase anterior, entre 300Hz y 6kHz. En esta fase se distinguieron tres zonas; (iii) Fase III: correspondiente a un gas granular, observado a frecuencias inferiores a 300Hz. En la Figura 1 se presenta el diagrama de fases propuesto.



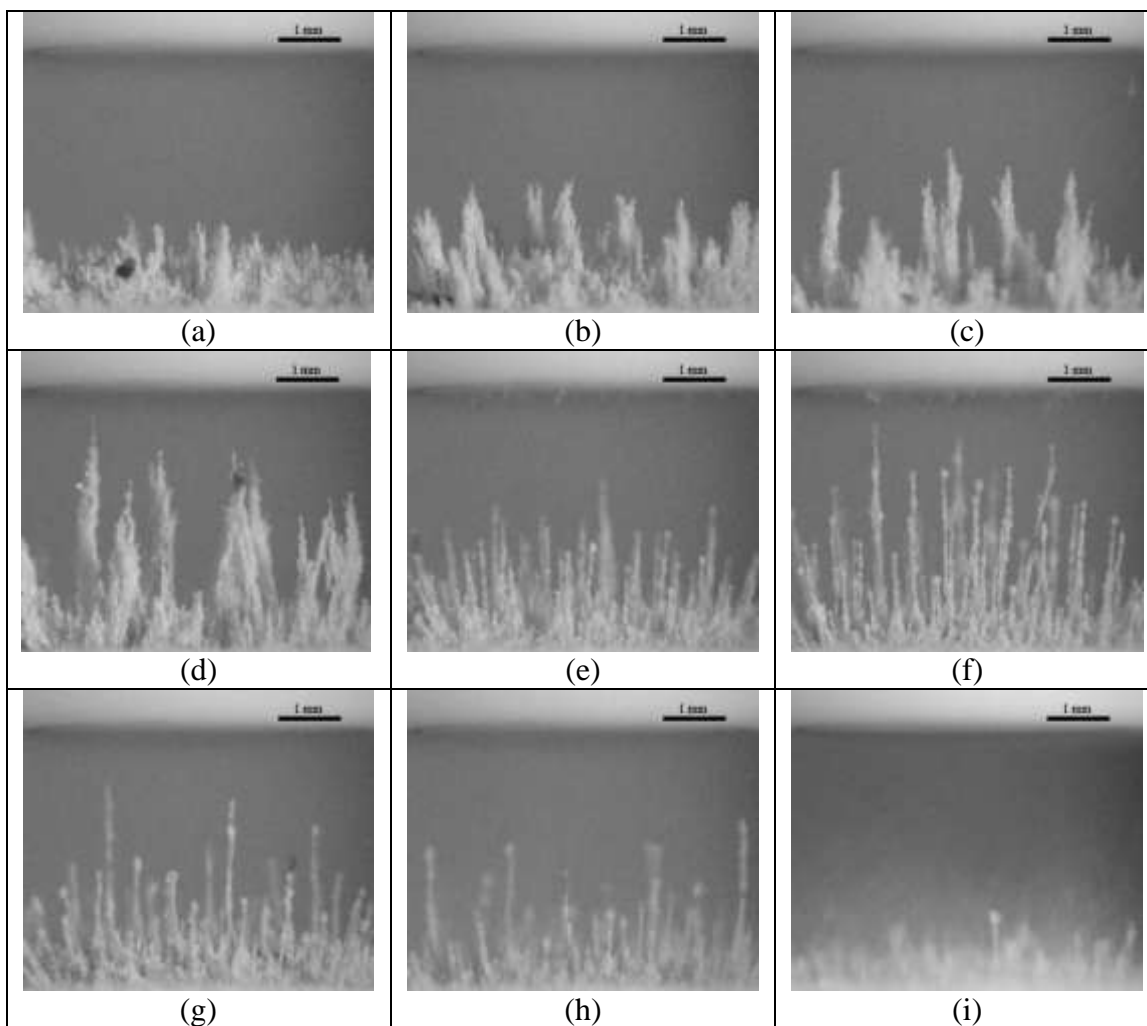
**Figura 1.** Diagrama de Fases propuesto para la mezcla granulométrica original [1].

En la Figura 2 se muestran microfotografías representativas de las Fase II y Fase III ya mencionadas. En las Figuras 2a a 2d, la zona de alta frecuencia, HFZ, (de 2kHz a 6kHz).

A medida que el campo eléctrico incrementa, comienza a elevarse el fondo granular tanto como unas pocas estructuras en forma de pino, cada una de ellas formadas por un gran número de granos. Por debajo de 2kHz hasta aproximadamente los 750Hz, se observa un cambio en la morfología de las estructuras. En esta zona de frecuencia media (MFZ) de la Fase II (Figura 2e y f) las estructuras son muy delgadas o filamentosas, y hay un aumento en cantidad. Estos filamentos a su vez alcanzan el electrodo superior cuando el voltaje es superior a los 8–10kVpp. No hay evidencias de descargas eléctricas cuando los filamentos se ponen en contacto con el contraelectrodo. Estos filamentos mantienen la estabilidad mecánica una vez que el campo eléctrico se suprime, habiendo o no alcanzado el electrodo superior.

La Figura 2g y h, muestran estructuras en 500Hz y 300Hz, respectivamente. Esta es la zona de baja frecuencia, LFZ, de la Fase II. Se pudo observar un nuevo cambio, más en la dinámica que en la morfología de los filamentos. En esta zona, a pesar de que los filamentos se vuelven más finos, incluso de sección monogranular, comienza a evidenciarse una inestabilidad electromecánica, especialmente por el decremento de la frecuencia del campo eléctrico más que el incremento de la amplitud de campo eléctrico. Esta inestabilidad provoca una rápida variación en la altura de los filamentos, que pueden crecer, caer o colapsar, y volver a crecer nuevamente.

La Fase III es encontrada por debajo de los 300Hz y la identificamos como un “gas de partículas”. La principal característica de esta fase es el movimiento desordenado y de alta velocidad de las mismas (Figura 2i).



**Figura 2.** Microfotografías a (a) 6kHz 15kVpp, (b) 4kHz 15kVpp, (c) 3kHz 13kVpp, (d) 2kHz 12kVpp, (e) 1kHz 9kVpp, (f) 750Hz 8kVpp, (g) 500Hz 6kVpp, (h) 300Hz 6kVpp y (i) 200Hz 5kVpp.

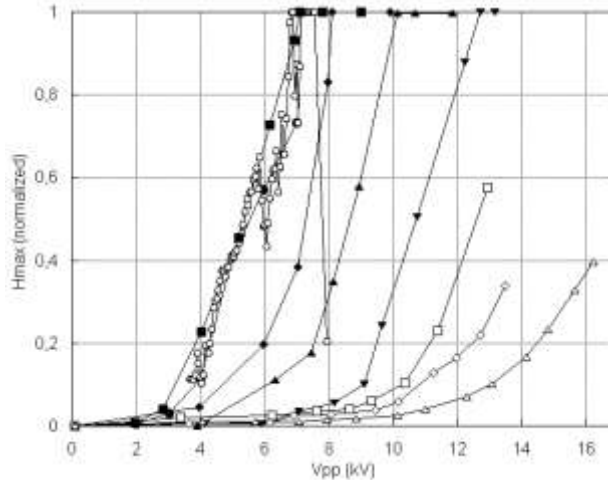
Las estructuras observadas en la Fase II se caracterizaron midiendo la dependencia de la altura máxima ( $H_{max}$ ) alcanzada en función del voltaje ( $V_{pp}$ ) y la frecuencia aplicada. Las medidas de alturas de las estructuras se normalizaron utilizando la separación de los electrodos como unidad de medida. Para evitar los efectos de bordes, cada cuadro o imagen analizada fue recortada con una ventana virtual del 60% del diámetro de los mismos.

En la Figura 3 se muestra un crecimiento continuo de las curvas  $H_{max}$  vs.  $V_{pp}$ . A un valor de  $V_{pp}$  constante se puede observar a frecuencias menores  $H_{max}$  aumenta. La pendiente de cada curva depende de la velocidad con que incrementa la intensidad del campo, pero la posición relativa entre las curvas o el aspecto cualitativo de la figura, tomada en conjunto, son independientes de la velocidad de incremento, aún si los mismos son realizados paso a paso.

Las fluctuaciones electromecánicas observadas en la LFZ de la Fase II son evidentes cuando usamos el máximo rango de muestras de nuestra cámara CCD, por ejemplo, a 300Hz (observar, en la Figura 3, curva de círculos vacíos). Por debajo de los 500Hz las fluctuaciones dominan sobre el crecimiento de los filamentos individuales.

Es importante destacar que las estructuras y su crecimiento dinámico encontrado en cada fase no muestran ningún fenómeno notable de histéresis cuando se suprime el campo eléctrico y es aplicado nuevamente. También observamos que una vez que el campo eléctrico es suprimido, las estructuras

pueden sobrevivir o caer. En el primer caso pueden colapsar con una pequeña vibración mecánica. Las estructuras pueden volver a crecer nuevamente con una nueva aplicación de gradiente de potencial.

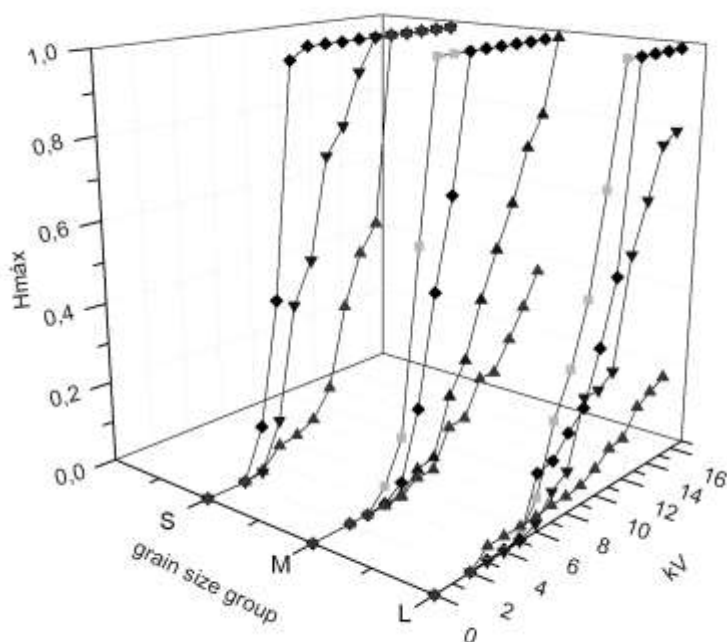


**Figura 3:** Mapa de frecuencias de altura máxima alcanzada  $H_{max}$ , para la mezcla original. Círculos llenos: 300Hz, círculos vacíos con más resolución: 300Hz, cuadrados llenos: 500Hz, rombos llenos: 750Hz, triángulos arriba llenos: 1kHz, triángulos abajo llenos: 2kHz, cuadrados vacíos: 3kHz, rombos vacíos: 4kHz, triángulos arriba vacíos: 6kHz.

Por último, a partir de la segregación de la muestra original en distintas poblaciones granulométricas más acotadas (ver Tabla 2), se pudieron obtener las evoluciones de la Figura 4. En ella se observa que las partículas más pesadas inician su movimiento a mayores campos, mientras que las más pequeñas entran a la fase gaseosa, Fase III, a mayores frecuencias y menores tensiones. Esta dinámica está siendo actualmente investigada y se están ajustando distintos modelos descriptivos y cuantificando los fenómenos. Por otro lado, pudo evidenciarse un corrimiento de los límites del diagrama de fases propuesto para la muestra original, según el tamaño de grano.

**Tabla 2.** Poblaciones granulométricas separadas por tamizado.

Población, rango	Nomenclatura
98 a 150 $\mu\text{m}$	Mayores tamaños (L)
43 a 75 $\mu\text{m}$	Tamaño medio (M)
< 30 $\mu\text{m}$	Menores tamaños (S)



**Figura 4:** Crecimiento de Hmax en función de distintas poblaciones granulométricas L, M y S (ver Tabla 2). Triángulos arriba: 6kHz, Triángulos abajo: 4kHz, Rombos: 2kHz, Cuadrados: 1kHz.

#### 4. CONCLUSIONES

En el muestra la existencia de diferentes fases cuando un polvo compuesto inorgánico (formado por partículas de forma irregular), está bajo la influencia de altos campos eléctricos de frecuencia y amplitud variable. Tres fases diferentes pueden ser cualitativamente distinguidas: Fase I, “sólido granular precipitado”; Fase II, “fase de crecimiento y cohesión de estructuras”; y la Fase III, “gas granular”. Se encontró que las estructuras formadas en la HFZ (zona de alta frecuencia) de la Fase II poseen una gran cantidad de granos cohesionados en forma de pinos de base anchas, mientras que en MFZ (zona de frecuencia media) las estructuras aparecen como delgados filamentos y por esa razón hay un incremento en su número.

El registro continuo de imágenes y el análisis de la velocidad de crecimiento de las estructuras muestran que en la zona de alta y media frecuencia, HFZ y MFZ, de la Fase II crecen de un modo monótono y su altura máxima Hmax siempre indica valores crecientes.

En la zona de baja frecuencia, LFZ, de la Fase II, la inestabilidad electromecánica comienza a ser importante, especialmente disminuyendo la frecuencia más que por un incremento de la amplitud del campo eléctrico. Esta inestabilidad provoca cambios rápidos en la altura de los filamentos, que pueden crecer o caer o colapsar y volver a crecer nuevamente.

La Fase III se encuentra por debajo de los 300Hz. Su principal característica es un movimiento desordenado y veloz de los gramos de polvo que se asemeja a una nube de polvo entre los electrodos.

Distintas poblaciones granulométricas mostraron cómo el crecimiento es fuertemente dependiente del tamaño y peso de las partículas. El volumen y por lo tanto la superficie eficaz tendrá por lo tanto una fuerte influencia en las fuerzas de fricción y la polarizabilidad de cada grano, el movimiento de cargas y la estabilidad electromecánica en el campo de fuerzas presente.

Actualmente se están cuantificando los efectos y ajustando distintos modelos fenomenológicos y descriptivos de las dinámicas encontradas.

## 5. AGRADECIMIENTOS

Este trabajo fue financiado por el Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas (CONICET), la Agencia Nacional de Promoción Científica y Tecnológica (ANPCyT, PICT N° 06-31995), la Universidad Nacional de La Plata y la colaboración de la Pontificia Universidad Católica Argentina.

## REFERENCIAS

1. L.M. Salvatierra, O.L. Cortés Bracho, P.L. Dammig Quiña, I.M. Irurzun, E.E. Mola. *Chemical Physics Letters* 481 (2009) 194–197. (*paper*)
2. H.M. Jaeger, S.R. Nagel, R.P. Behringer, *Rev. Mod. Phys.* 68 (1996) 1259. (*paper*)
3. L.P. Kadanoff, *Rev. Mod. Phys.* 71 (1999) 435. (*paper*)
4. M.V. Sapozhnikov, A. Peleg, B. Meerson, I.S. Aranson, K.L. Kohlstedt, *Phys. Rev. E* 71 (2005) 011307. (*paper*)
5. I.S. Aranson, L.S. Tsimring, *Rev. Mod. Phys.* 78 (2006) 641. (*paper*)
6. I.S. Aranson, D. Blair, V.A. Kalatsky, G.W. Crabtree, W.-K. Kwok, V.M. Vinokur, U. Welp, *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000) 3306. (*paper*)
7. M.V. Sapozhnikov, I.S. Aranson, J.S. Olafsen, *Phys. Rev. E* 67 (2003) 010302. (*paper*)
8. M. Belkin, A. Snezhko, I.S. Aranson, W.K. Kwok, *Phys. Rev. Lett.* 99 (2007) 158301. (*paper*)
9. I.S. Aranson, M.V. Sapozhnikov, *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004) 234301. (*paper*)
10. The inorganic salt employed in these studies was provided by Dem S.A. There is no information on the amount of impurities although it is known to contain a small amount of mica and silicones.