

## Onsager 이론으로 확장한 Maxwell-Wagner 분극 모델에 의한 전기유변 현상 모사

김영대<sup>†</sup>

전남대학교 화학공학부  
61186 광주광역시 북구 용봉로 77  
(2020년 3월 2일 접수, 2020년 4월 13일 수정본 접수, 2020년 4월 19일 채택)

## Simulation of Electrorheological Fluids by the Extended Maxwell-Wagner Polarization Model with Onsager Theory

Young Dae Kim<sup>†</sup>

School of Chemical Engineering, Chonnam National University, 77, Yongbong-ro, Buk-gu, Gwangju, 61186, Korea  
(Received 2 March 2020; Received in revised form 13 April 2020; accepted 19 April 2020)

### 요 약

Onsager 이론으로 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델을 이용하여 전도성 입자로 제조된 전기유변(Electrorheological, ER) 액체의 전기유변 현상에 대한 전산 모사를 수행하였다. 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델을 이용한 전산 모사는 전도성 입자로 제조된 전기유변 액체의 특성인 비제곱 전기유변 현상( $\Delta\tau \propto E^n, n \approx 1.5$ )을 확인하였다. 전단 흐름에서 전단응력이 정상상태에 도달하는 시점은 전기장 하에서 생성된 사슬 모양 구조가 전단 흐름에 의해 깨짐과 재생성이 정상상태에 도달하는 지점으로 나타났다. 또한, 전단 속도의 증가에 따라 전단응력이 최솟값을 보이는 전도성 입자를 기반으로 한 전기유변 액체의 현상도 관찰하였으며, 이것은 입자의 사슬 모양 구조가 무작위 배열로 바뀌는 순간에 발생하는 것임을 관찰하였다. 입자의 부피 분율  $\phi$ 가 증가에 따라 전단응력은 증가하다가 일정해지는 경향도 관찰하였다.

**Abstract** – The extended Maxwell-Wagner polarization model is employed to describe the ER behavior of the conducting particle ER suspensions, and solutions to the equation of motion are obtained by dynamic simulation. The simulation results show the nonlinear ER behavior ( $\Delta\tau \propto E^n, n \approx 1.5$ ) of the conducting particle ER suspensions. The response point, where shear stress reaches steady-state, is the point where stable break-up and rebuild of the chain-like structure of particles reaches. Also, it shows the minimum of shear stress, which corresponds the start-up of random particle configuration. The shear stress reaches plateau as particle volume fraction increases.

Key words: Electrorheology, Electrorheological fluids, Extended Maxwell-Wagner polarization, Dynamic Simulation, Suspension

### 1. 서 론

Winslow [1]에 의해 1940년 처음 관찰된 전기유변(Electrorheological, ER) 현상은 작은 입자들로 구성된 현탁액 흐름에 수직 방향의 외부 전기장을 인가할 때 유변학적 특성이 급격하게 변화하는 것을 말한다. 분산된 입자들은 외부 전기장에 의하여 전기장 방향으로 사슬 모양 구조로 정렬하며, 이로 인해 현탁액의 점도가 큰 폭으로 변하게 된다. 초기 전기유변 액체는 일반적으로 절연성 액체에 분극성이 강한 절연성 입자를 분산시킨 현탁액이고, 현탁액의 점도 및 항

복 응력이 가해진 전기장 세기의 제곱( $E^2$ )에 비례함을 보였다. 이런 전기유변 액체와 그 메카니즘에 대한 많은 연구가 진행되었다[2-7].

현탁액의 활성화를 위해 종종 물과 같은 첨가제가 사용되었으나 [8-10], 전력 소비 증가 또는 부식 등의 제한 조건 때문에 활성제의 사용 없이 높은 전기유변 현상을 보이는 전기유변 액체의 개발이 필요하였다. 이에 따라 우수한 전기적 및 기계적 특성을 가진 전도성 고분자가 유망한 전기유변 재료로서 주목을 받게 되었고, 특히 전도성 고분자-유기/무기 복합체 입자를 사용한 전기유변 액체가 유망한 전기유변 현상을 보였다[5,7,11-13]. 전도성 입자를 사용한 경우에는 항복 응력이 전기장 세기에 비제곱 의존성을 나타내었다 [5,7,11-13]. 따라서 이런 비제곱 의존성을 설명할 새로운 메카니즘이 필요하게 되었다.

전기유변 현상을 설명하기 위해 많은 메카니즘들이 제시되었으나 [2,14-20], 여러 가지 메카니즘들 중 정전기 분극 모델과 전도 모

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.

E-mail: youngdae@jnu.ac.kr

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

델이 전기유변 현상의 이론적인 측면에 적합한 설명인 것으로 보인다. 정전기 분극 모델은 절연 전기유변 액체의 전기유변 현상을 설명하며, 입자와 매질 사이의 유전상수 불일치가 전기유변 현상을 나타내며, 항복 응력이 전기장 크기에 제곱 의존성( $\tau \propto E^2$ )을 보인다[2-3,6,17,20]. 그러나 정전기 분극 모델은 전도성 물질을 이용한 전기유변 현상(항복 응력의 전기장 크기에 비제곱 의존성,  $\tau \propto E^n, n < 2.0$ )을 설명할 수 없는 문제가 있다.

전도 모델은 직류 또는 저주파수 교류 전기장에서 입자 또는 액체 매질의 전도도의 불일치로 인해 전기유변 효과가 나타난다는 것을 고려한 메커니즘이고, 항복응력이 전기장 크기에 1.5 승에 비례함을 예측한다[18,19]. 그러나 전도 모델은 전기장이 가해진 후 미세 구조 변화에 관계가 없이 입자 상호 작용만을 고려한다. 그러므로 전기유변 액체의 응답 시간과 같은 동적 현상에 대한 설명을 제공할 수 없으며, 무수 전기유변 액체의 전기유변 현상인 항복응력의 전기장 크기의 제곱 의존성을 설명하지 못한다.

현재까지 유망한 것으로 알려진 정전기 분극 모델과 전도 모델들은 전술한 단점들로 인해 그 사용이 제한적이어서 이들 메커니즘을 이용하여 효과적인 전기유변 액체를 개발하는 것은 한계가 있다. 그러므로 이런 제한들을 해결하기 위해 Onsager 이론으로 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델이 제시되었다[21]. 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델은 입자와 액체가 유전상수뿐만 아니라 전도도를 지닌 경우에도 입자의 분극을 설명할 수 있는 장점이 있으며, 항복 응력의 전기장 크기의 제곱 및 비제곱 의존성을 모두 설명할 수 있다. 여기서는 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델을 이용하여 전단 흐름에서 전기유변 유체의 전산 모사를 수행하였다.

## 2. 모델과 모사 방법

전기유변 액체는 Newtonian 액체(복소 유전상수  $\epsilon_c^* = \epsilon_c - j(\sigma_c/\epsilon_0\omega)$ , 점도  $\eta_c$ )에 분산된 단단한 구형 입자(지름  $d$ , 복소 유전상수,  $\epsilon_p^* = \epsilon_p - j(\sigma_p/\epsilon_0\omega)$ )들로 구성되어 있다고 간주한다. 여기서  $\epsilon$ 는 유전상수,  $\epsilon_0$ 는 진공에서의 유전상수,  $\sigma$ 는 전도도,  $\omega$ 는 교류(AC) 전기장  $Ee^{j\omega t}e_z$ 의 주파수( $\omega = 0$  이면 직류(DC) 전기장,  $e_z$ 는 전기장의 방향 단위 벡터),  $j = \sqrt{-1}$  이며, \*는 복소수임을 나타내고 첨자  $c$  및  $p$ 는 각각 액체와 입자를 나타낸다. 전기유변 액체는 Fig. 1에 나타난 전극 사이에 존재하며, 보통 전기유변 액체에 사용되는 입자 크기는 마이크로 크기여서 콜로이드와 Brownian 힘들은 무시될 수 있다[17,20,23].

관성을 무시하면 전극에서 어느 정도 떨어진 구형 입자  $i$ 의 움직임은 다음 식에 의해 결정된다.

$$F_i(\mathbf{R}_i) = 0 \tag{1}$$

여기서  $F_i(\mathbf{R}_i)$ 는 입자  $i$ 에 미치는 모든 힘을 나타내며, 이 힘은 모든 다른 입자들의 위치( $\mathbf{R}$ )에 영향을 받는다. 식 (1)은 전극에 붙어 있지 않는 모든 입자의 움직임을 표현하는 연계된 일련의 식들을 나타낸다.

외부 전기장  $Ee^{j\omega t}e_z$ 에 의한 정전기(electrostatic) 힘은 점 쌍극자로 간주하였다. 외부 전기장에 의해 유도된 입자  $j$ 의 존재에 의해  $i$ 번째 입자에 작용하는 힘은 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델[21]을 사용한다(Fig. 1).

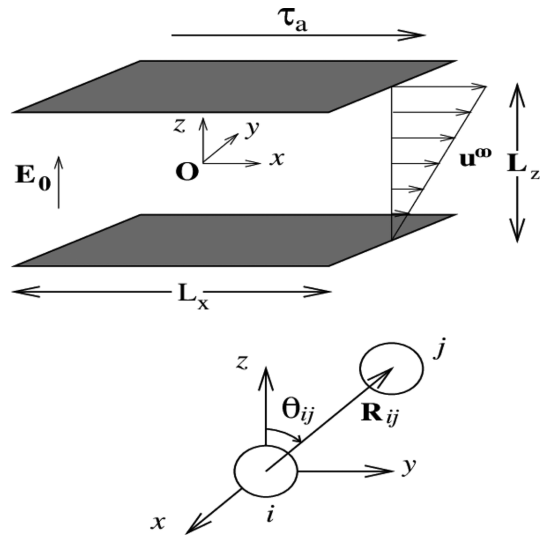


Fig. 1. Schematic diagrams showing the geometries of the sheared suspensions and sphere pairs. The bottom electrode is held fixed and the top electrode is displaced in the x-direction.  $R_{ij}$  is the center-to-center separation and  $\theta_{ij}$  is the angle between the line-of-centers and the applied electric field.

$$F_{ij}^{el}(R_{ij}, \theta_{ij}) = F_o \beta_{eff}^2 \left(\frac{d}{R_{ij}}\right)^4 ([3\cos^2\theta_{ij} - 1]e_r + \sin 2\theta_{ij}e_\theta) \tag{2}$$

$$\beta_{eff}^2 = \beta_d \frac{[(\omega\lambda)^2 + \beta_c/\beta_d]^2 + (\omega\lambda)^2 [1 - \beta_c/\beta_d]^2}{[1 + (\omega\lambda)^2]^2} \tag{3}$$

$$\beta_d = \frac{\epsilon_p - \epsilon_c}{\epsilon_p + 2\epsilon_c}; \beta_c = \frac{\sigma_p - \sigma_c}{\sigma_p + 2\sigma_c}; \lambda = \epsilon_0 \frac{\epsilon_p + 2\epsilon_c}{\sigma_p + 2\sigma} \tag{4}$$

$$\sigma_c = \sigma_{co}(1 - A + A \exp[(E/E_c)^{1/2}]) \tag{5}$$

여기서  $F_o = \frac{3}{16} \pi \epsilon_0 \epsilon_c d^2 E^2$ ,  $\epsilon_0 = 8.8542 \times 10^{-12}$  F/m,  $e_r$  및  $e_\theta$ 는 각각  $r$  및  $\theta$  방향의 단위 벡터,  $\sigma_{co}$ 는  $E = 0$ 일 때의 액체의 전기 전도도,  $A$ 와  $E_c$ 는 해당 입자 및 액체 조건에 따른 Onsager 상수들이다.  $\omega\lambda \rightarrow \infty$  이거나 전기유변 액체가 절연 물질로 구성된 경우에는  $\beta_{eff} = \beta_d$ 이고,  $\omega\lambda \rightarrow 0$  일 때(DC 전기장)에는  $\beta_{eff} = \beta_c$ 이 된다.

전극에 의해 입자  $i$ 에 작용하는 힘은 입자  $i$ 와 모든 다른 입자들에 대해 전극 표면에 각각의 투영된 입자(image particle) 사이의 정전기적 상관관계(식 (2))에 의해 주어진다 고 간주한다.

$$F_{ij}^{el, wall}(\mathbf{R}_j) = \sum_j F_{ij}^{el}(\mathbf{R}'_{ij}, \theta'_{ij}) \tag{6}$$

식 (6)의 ' 표시는 입자  $i$ 와 입자  $j$ 의 투영된 입자 사이의 상관관계를 나타낸다. 힘의 합이  $\mathbf{r}$ 를 포함한 모든 입자에 대해 행해짐에 주의한다.

입자들은 액체의 움직임에 의해 유체역학적 저항에 노출된다. 단 순화를 위해 여기서는 입자  $i$ 에 작용하는 유체역학적 힘을 Stokes' 법칙으로 나타낸다.

$$F_i^{hyd} = 3\pi\eta_c d(\mathbf{u}^\omega(\mathbf{R}_i) - d\mathbf{R}_i/dt) \tag{7}$$

여기서  $\mathbf{u}^\omega(\mathbf{R}_i)$ 는 주변 속도를 나타낸다.

입자와 입자 사이 및 입자와 전극 벽 사이의 작용하는 강체 구상

관관계는 각각 근거리 반탄력으로 나타내었다.

$$F_{ij}^{rep}(R_{ij}) = -F_o \exp\left[\frac{R_{ij}-d}{0.01d}\right] e_r \tag{8}$$

$$F_{ij,wall}^{rep}(R_i) = -F_o \exp\left[\frac{H_i-d/2}{0.01d}\right] n \tag{9}$$

$H_i = L_z/2 - |z_i|$  이고  $L_z$ 는 전극 사이의 거리,  $n$ 은 현탁액에서 전극 방향으로의 단위 수직 벡터이다.

모든 힘을 식 (1)에 대입하여 입자  $i$ 에 대한 운동 방정식을 적을 수 있다.

$$3\pi\eta_c d \frac{d\mathbf{R}_i}{dt} = \sum_{j \neq i} F_{ij}^{el}(R_{ij}, \theta_{ij}) + \sum_j F_{ij}^{el}(R_{ij}', \theta_{ij}') + \sum_{j \neq i} F_{ij}^{rep}(R_{ij}', \theta_{ij}') + 3\pi\eta_c d \mathbf{u}^\infty(\mathbf{R}_i) \tag{10}$$

두 번째 합은 '은 입자  $i$ 와 입자  $j$ 의 투영된 입자 사이의 정전기적 힘을 나타내며, 이 힘들은 입자  $i$ 를 포함한 모든 입자의 투영된 입자에 대한 힘을 합한 것이다. 세 번째 합은 "은  $i$ 를 제외한 모든  $j$  입자와  $i$  입자 사이의 반탄력과  $i$  입자와 전극들 사이의 반탄력을 합한 것을 나타낸다. 식 (10)은 전극에서 떨어져 있는 입자의 운동을 나타낸다. 전극에서 0.05d 이내 에 있는 입자의 경우 입자의 속도가 전극의 속도와 같다고 가정하였다. 이 부착 조건(sticking condition)은 실험적으로 관찰되었다[17].

운동 방정식은 다음의 길이, 힘 및 시간 척도에 의해 무차원(dimensionless)화 되었다.

$$l_{sc} = d, F_{sc} = \frac{3}{16} \pi \epsilon_0 \epsilon_c d^2 E^2, t_{sc} = 16 \eta_c / (\epsilon_0 \epsilon_c E^2)$$

따라서 전극에서 떨어진 입자  $i$ 의 무차원 운동 방정식은 다음과 같다.

$$\frac{d\mathbf{r}_i^*}{dt^*} = \sum_{j \neq i} f_{ij}^{el*} + \sum_j f_{ij}^{el*} + \sum_{j \neq i} f_{ij}^{rep*} + \mathbf{u}^{\infty*}(\mathbf{r}_i^*) \tag{11}$$

\*는 무차원 수임을 나타낸다. 부착된 입자들에 대한 식은 다음과 같다.

$$dx_i^*/dt^* = u_{x,elec}^*, dy_i^*/dt^* = u_{y,elec}^* \tag{12}$$

$$dz_i^*/dt^* = \sum_{j \neq i} f_{z,ij}^{el*} + \sum_j f_{z,ij}^{el*} + \sum_{j \neq i} f_{z,ij}^{rep*} + u_{z,elec}^* \tag{13}$$

여기서는 다음의 정상 전단 흐름을 고려하였다.

$$\mathbf{u}^{\infty*}(\mathbf{r}_i^*) = \begin{cases} t \leq 0 & \\ \dot{\gamma}^*(z_i^* + L_z^*/2) e_x & t > 0 \end{cases} \tag{14}$$

여기서  $\dot{\gamma}^*$ 는 무차원 전단 속도이다.

입자의 위치가 시간의 함수로 구해지면 유변학적 특성이 계산될 수 있다. 전체 전단응력은 정전기와 유체역학의 기여로 표현된다 [17,23].

$$\tau^T = \tau^E + \tau^H \tag{15}$$

유체역학의 영향을 제외한 직접적인 정전기적 무차원 전단응력은 다음과 같다.

$$\Delta\tau^*(t^*) = -(1/V^*) \sum_i z_i^* f_{x,i}^*(t^*) \tag{16}$$

여기서 증가된 무차원 전단응력  $\Delta\tau^*(t^*)$ 은  $z$ -방향에 수직인 평면에서  $x$ -방향으로 작용하는 무차원 시간 의존성 전단응력이고, 전기장에 가해졌을 때 전기유변 현상에 의해 발생한 전단응력의 증가이다.  $f_{x,i}^*(t^*)$ 는  $x$ -방향으로 입자  $i$ 에 작용하는 모든 정전기 및 근거리 반탄력을 더한 것이고,  $V^*$ 는  $N$ 입자를 포함하고 있는 무차원 부피이다.

### 3. 결과 및 고찰

많은 전기유변 실험들이 DC 전기장 하에서 전도성 입자로 제조된 전기유변 액체를 사용하여 수행되었고 좋은 전기유변 현상을 보고하였다[5,7,11-13,25]. 여기서는 전도성 입자들로 제조된 전기유변 액체의 실험 조건과 같은 상황에서 전산 모사를 진행하였다.

식 (11)-(14)을 동적 모사(dynamic simulation) 방법으로 풀었다. DC 전기장을 사용하므로 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델(식 (2)-(4)에서  $\beta_{eff} = \beta_c = (\sigma_p - \sigma_c) / (\sigma_p + 2\sigma_c)$ )을 이용하였고, 전기장이 나 입자의 전도도가 큰 경우에 입자 사이의 있는 액체의 전도도  $\sigma_c$ 가 전기장의 크기에 따라 변화하는 것을 나타내는 Onsager 이론 식 (5)를 이용하였다[24]. 일반적으로 실험에 연속 매질로 사용되는 액체의 전도도는 보통  $\sigma_{co} \approx 10^{-14}$  S/cm 정도이고, 전도성 입자의 전도도  $\sigma_p$ 는 보통  $10^{-9}$  S/cm보다 매우 크므로 전산 모사에는  $\sigma_p / \sigma_{co} = 10^5$ 를 사용하였고, 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델이 비제곱 전기유변 현상은 보이는 조건(Onsager 변수인  $A = 0.1$  및  $E_c = 0.018$  kV/mm)을 사용하였다[21].

$N$ 개의 구형 입자를 전극 사이에 무작위(random)로 배치한다. 주기적(periodic)인 경계가  $x^* = \pm L_x^*/2$  및  $y^* = \pm L_y^*/2$ 에 존재하고 전극들은  $z^* = \pm L_z^*/2$ 에 놓여있다. 2차원 모사에서는 모든 입자가 평면에 배치되었다( $y^* =$  일정). 정상상태 전단 흐름 모사는 각각의 부피 분율에 대해 3개의 초기 배열들을 가지고 수행하였다. 식 (11)-(14)는 무차원 시간 간격  $\Delta t^* \times 10^{-3}$ 으로 각 입자에 대해 수치 적분되었다. 입자들은 Euler 방법에 의해 움직임이 결정되었고 전극에서 입자의 속도는 전극의 속도와 같다는 경계 조건을 사용하였다. 초기 무작위 입자 배열은 전단 속도가 0인 조건에서 전기장 하에서 준안정(meta-stable) 배열을 생성하였다. 이 과정은 전단을 가하기 전에 일정 시간 현탁액에 전기장을 가해 초기화를 하는 전기유변 실험 과정과 유사하다. 각 초기 배열에서 얻은 준안정 배열들에 대해 다양한 전기장의 세기(0.5 - 2.0 kV/mm)와 전단 속도( $\dot{\gamma}^* = 0.0001 - 100$ )에 대해 전산 모사를 수행했다.

Fig. 2는 부피 분율  $\phi = 0.3(N = 192, L_x^* = 50, L_z^* = 10)$ 인 전기유변 유체에 대해  $\dot{\gamma}^* = 0.01$ 에서 다양한 전기장 세기에서 증가된 전단응력  $\Delta\tau$ 를 변형률(strain)의 함수로 나타내었다. 전단응력은 사슬 모양 구조의 변형 정도에 따라 증가하였고 정상상태에 도달하였고, 전기장의 세기가 증가함에 따라 증가함을 보여주었다. 전단응력이 정상상태에 도달하는 시점의 변형률  $\gamma \approx 0.6$ 이었다.

Fig. 3은 Fig. 2에서  $E = 1.0$  kV/mm일 때 여러 변형률에서의 입자 배열을 도시한 것이다.  $\dot{\gamma}^* = 0.01$ 로 변형이 시작되기 직전인  $\gamma = 0$ 에서는 입자들이 전극 사이에 사슬 모양 구조로 형성이 되어있는 준안정 배열(Fig. 3(a))을 보여준다. 전단 흐름이 시작되면 형성된 사슬 모양 구조는 변형을 일으키고 시간이 경과 할수록(변형률이 증가할수록) 사슬 모양 구조의 변화가 커지게 된다. Fig. 3(b)의 변

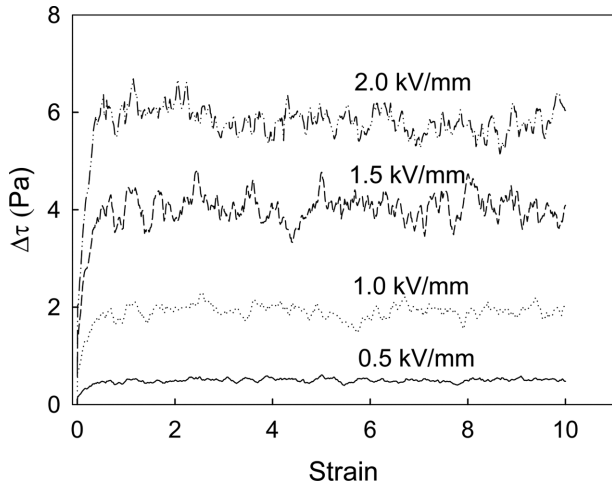


Fig. 2. Increased shear stress as a function of strain at various electric field strength. Volume fraction  $\phi = 0.3$  and  $\dot{\gamma}^* = 0.01$ .

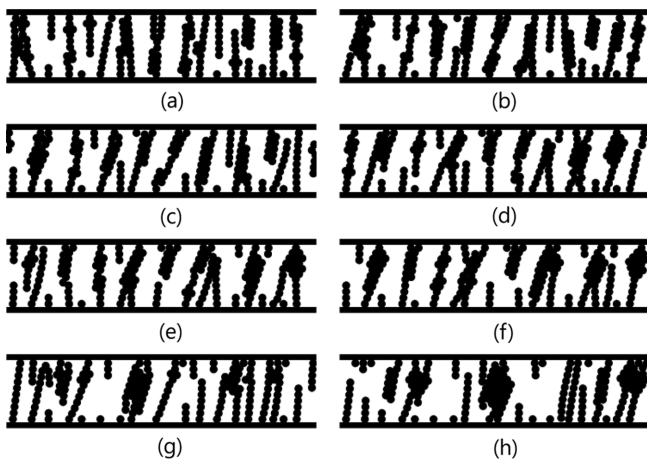


Fig. 3. Configuration of volume fraction  $\phi = 0.3$  suspension at  $E = 1.0$  kV/mm and  $\dot{\gamma}^* = 0.01$  for various strains (a)  $\gamma = 0$ , (b)  $\gamma = 0.2$ , (c)  $\gamma = 0.4$ , (d)  $\gamma = 0.6$ , (e)  $\gamma = 0.8$ , (f)  $\gamma = 1.0$ , (g)  $\gamma = 2.0$  and (h)  $\gamma = 3.0$ .

형률  $\gamma = 0.2$ 인 경우에는 가해진 전단 흐름에 의해 사슬 모양 구조가 기울어짐을 보여주고, Fig. 3(c)의 변형률  $\gamma = 0.4$ 인 경우에는 가해진 전단에 의해 사슬 모양 구조가 깨지고 재생성 되기 시작함을 나타낸다. 변형률  $\gamma \geq 0.6$ 인 경우에는(Fig. 3(d)-3(h)) 안정적으로 사슬 모양 구조가 깨지고 재생성이 되는 현상을 보여주고 있다. 즉 대략 변형률  $\gamma \approx 0.6$ 에서부터 사슬 모양 구조의 깨짐과 재생성이 정상 상태에 도달하여 Fig. 2에서 관찰된 전단응력이 정상상태에 도달하는 시점( $\gamma \approx 0.6$ )과 일치함을 알 수 있다. 또한, Fig. 2에서의 변화율에 따른 전단응력의 요동(fluctuation)은 입자의 사슬 모양 구조의 재배열(정상상태에서 사슬 구조의 깨짐과 재생성)에 의한 변화임을 나타낸다.

Marshall[22] 등은 유체역학과 정전기 영향의 비를 나타내는 Mason 수,  $Mn = \eta_c \dot{\gamma} / (2\epsilon_0 \epsilon_r E^2)$ 을 정의하였다.  $Mn$  값이 작으면( $Mn \ll 1$ ,  $E$ 가 크거나  $\dot{\gamma}$ 이 작은 경우) 정전기적 힘이 전기유변 현상에 지배적이게 되고,  $Mn$  값이 크면( $Mn \gg 1$ ,  $E$ 가 작거나  $\dot{\gamma}$ 이 큰 경우) 유체역학 힘이 지배적으로 현탁액의 구조를 조절하게 된다.  $Mn = \dot{\gamma}^* / 32$ 로 무차원 전단 속도와 연계된다.

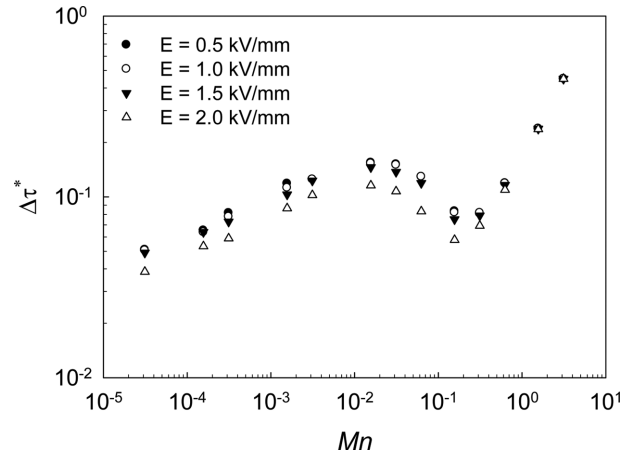


Fig. 4. Increased dimensionless shear stress as a function of  $Mn$  number for volume fraction  $\phi = 0.3$  suspension.

Fig. 4는 부피 분율  $\phi = 0.3$ 인 전기유변 액체에 대해 다양한 전기장 세기에서  $Mn$  수 변화에 따라 증가된 무차원 전단응력  $\Delta\tau^*$ 를 나타낸 것이다.  $\Delta\tau^*$ 는  $Mn$  수의 증가에 따라 증가-감소-증가의 현상을 보여주고 있다. 최솟값은  $0.1 < Mn < 1$  범위에서 나타났다.  $Mn < 0.1$ 인 영역에서는  $\Delta\tau^*$ 의 값이 전기장 세기가 증가함에 따라 감소함을 보이고  $Mn > 1$ 인 영역에서는 유체역학 힘의 지배적이어서  $\Delta\tau^*$ 의 값이 전기장 세기에 무관함을 보인다. 정전기 분극 모델에 의한 전기유변 현상( $\tau \propto E^2$ )인 경우에는[6,17,20]  $Mn$  수의 모든 범위에서 전기장 세기에 무관하게 같은  $\Delta\tau^*$  값을 지니 한 개의 직선으로 나타날 것이다. Fig. 4에서처럼 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델은  $Mn < 0.1$ 인 영역에서는  $\Delta\tau^*$ 의 값이 전기장의 세기에 따라 다른 값을 갖는 전기유변 현상을 보이고, 이것은 전도성 입자로 제조된 전기유변 액체에서 관찰되는 항복 응력의 전기장 세기의 비제곱 의존성( $\tau \propto E^2$ ,  $n \approx 1.5$ )으로 인도할 것이다.

Fig. 5는 부피 분율  $\phi = 0.3$ 인 전기유변 액체에 대해 동적(dynamic) 항복 응력을 전기장의 세기의 함수로 나타낸 것이다.  $\dot{\gamma}^* = 0.0001$ 에서의  $\Delta\tau^*$ 의 값을 동적 항복 응력이라고 간주하였으며, Klingenberg 등도[17] 정전기 분극 모델의 전산 묘사를 통해  $\dot{\gamma}^* = 0.0001$ 의  $\Delta\tau^*$ 의 값이 항복응력으로 간주할 수 있음을 보였다.

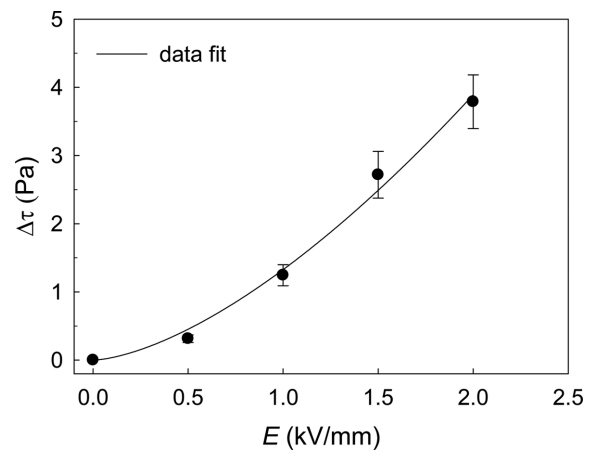


Fig. 5. Dynamic yield stress as a function of the electric field strength. Symbols are simulation data and line is the result of data fitting. Data is for volume fraction  $\phi = 0.3$  suspension.

Fig. 5의 기호는 전산 모사 결과이고 실선은 모사 결과를  $\Delta\tau \propto E^n$ 에 맞춘(fitting) 것이다. 자료 맞춤 결과  $n \approx 1.55$ 로 나타나 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델을 이용한 전산 모사가 비제곱 전기유변 현상을 보임을 확인하였다. 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델로 예측한 항복응력이 비제곱 전기유변 현상을 나타내었으나[21], 항복응력을 식으로 표현하기 위해  $\beta_c$ 를 단순화하였다. 따라서  $\beta_c$ 의 단순화 없이 전산 모사를 통해 비제곱 전기유변 현상을 확인하였다. 자료는 세 개의 배열에 대해 전산 모사에서 얻은 평균값이고 오차 범위를 도시하였다.

전도성 입자를 기반으로 한 전기유변 액체들의 전기유변 현상에서 나타나는 현상 중 하나는 전단 속도의 증가에 따라 전단응력이 최솟값을 보인다는 것이다[5,7,11-13,25]. 실험 결과들을 무차원 전단 속도에 대응하는  $Mn$  수의 함수로 나타내면 최솟값이  $Mn \approx 0.4$  부근에 존재함을 보이고[25], 이 현상은 Fig. 4에 나타난 것처럼  $0.1 < Mn < 1$  범위에서 전단응력의 최솟값을 보이는 것과 일치한다. 이런 최솟값에 대한 설명으로 정전기와 유체역학 힘이 서로 비슷한 경우에 두 힘이 서로 간접적으로 영향을 주어 입자 사이의 상관관계에 상승 또는 하강 영향을 보이고, 이 현상은 입자 구조의 재배열에 의해 발생할 수 있다고 하였다[25].

Fig. 6은 부피 분율  $\phi = 0.3$ 인 전기유변 유체에 대해  $E = 1$  kV/mm에서  $Mn$  수 변화에 따른 정상상태의 입자 배열을 나타낸 것이다.  $Mn$  수가 증가함에 따라(무차원 전단 속도 증가에 해당) 전기유변 액체의 순간 변형이 커지고 그에 따라 입자의 사슬 모양 구조의 변화도 심해지는 것을 관찰할 수 있다(Fig. 6(a)-(f)).  $Mn$  수가 0.062 이하 일 때에는 입자들이 사슬 모양 구조를 유지하는 것으로 보이나, 이 경우에도  $Mn$  수가 증가함에 따라 사슬 모양 구조가 점점 줄어드는 것을 관찰할 수 있다(Fig. 6(a)-(c)).  $Mn$  수가 0.16보다 커지면 입자의 사슬 모양 구조가 거의 다 파괴되어 입자들이 부여된 전단 흐름에 의해 무작위적인 배열을 보임을 관찰할 수 있다(Fig. 6(d)-(f)). 입자의 사슬 모양 구조가 파괴되는 시점( $Mn = 0.16$ 인 지점은 Fig. 4의 최솟값을 갖는  $Mn$  수의 값과 일치한다. 따라서  $Mn$  수 변화에 따라 최솟값을 보이는 현상은 입자의 사슬 모양 구조가 무작위 배열로 바뀌는 순간(Fig. 6(d))에 해당하는 것으로 판단된다.

Fig. 7은  $\dot{\gamma}^* = 0.1$ 과  $E = 1.0$  kV/mm에서 증가된 무차원 전단응력  $\Delta\tau^*$ 를 입자의 부피 분율  $\phi$ 의 함수로 나타낸 것이다. 자료는 세 개의 배열에 대해 전산 모사에서 얻은 평균값이고 오차 범위를 도시하였다.  $\phi$ 가 증가하면 입자 수에 증가로 인해  $\Delta\tau^*$ 가 증가할 것으로 기대되나 전산 모사 결과  $\phi$ 가 증가함에 따라  $\Delta\tau^*$ 가  $\phi = 0.4$ 까지 증가



Fig. 6. Configuration of volume fraction  $\phi = 0.3$  suspension at  $E = 1.0$  kV/mm and  $\gamma = 10$  (a)  $Mn = 0.0031$ , (b)  $Mn = 0.031$ , (c)  $Mn = 0.062$ , (d)  $Mn = 0.16$ , (e)  $Mn = 0.31$ , (f)  $Mn = 3.1$ .

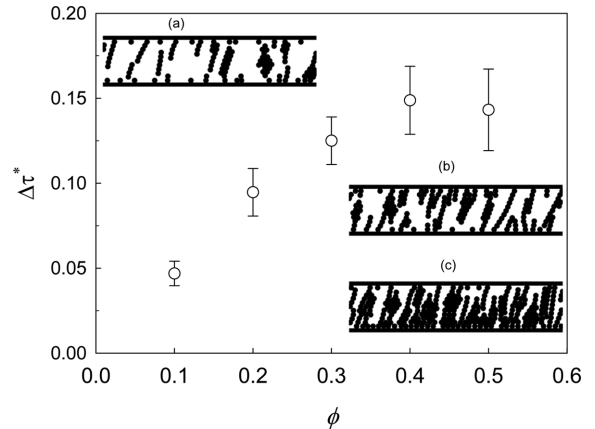


Fig. 7. Dimensionless increased shear stress as a function of volume fraction  $\phi$ .  $\dot{\gamma}^* = 0.1$  and  $E = 1.0$  kV/mm. Inset illustration is for (a)  $\phi = 0.2$ , (b)  $\phi = 0.3$ , and (c)  $\phi = 0.5$ .

하다가 이후에는 일정해지는 경향을 보였다. 이것이 입자 배열의 변화에 기인한 것인지 살펴보기 위해  $\phi = 0.2$  ( $N = 128$ ,  $L_x^* = 50$ ,  $L_z^* = 10$ , Fig. 7(a)),  $\phi = 0.3$  ( $N = 192$ ,  $L_x^* = 50$ ,  $L_z^* = 10$ , Fig. 7(b)) 및  $\phi = 0.5$  ( $N = 320$ ,  $L_x^* = 50$ ,  $L_z^* = 10$ , Fig. 7(c))에 해당하는 입자 배열을 Fig. 7에 삽입하였다.  $\phi$ 가 작은 경우에는 사슬 모양 구조가 한 개나 두 개의 입자 두께로 구성이 되어있으나(Fig. 7 (a)-(b)),  $\phi$ 가 큰 경우에는( $\phi = 0.5$ , Fig. 7(c)) 연결된 사슬 모양에 다수의 입자가 응집되어 전극 사이에 형성된 사슬 모양의 수는 거의 증가하지 않은 것으로 관찰되었다. 전기장의 가했을 때 증가된 전단응력은 전극 사이에 형성된 사슬 모양을 파괴하는 데 필요한 힘과 비례하고 사슬 모양의 두께와 큰 상관성이 없다. 따라서 높은  $\phi$ 에서는 다수의 입자로 응집된 사슬 모양의 형성으로 부피 분율이 증가하여도 전극 사이에 형성된 사슬 모양의 수가 증가하지 않아 전단응력이 증가하지 않게 된다. 부피 분율  $\phi = 0.3$ 보다 큰 경우 항복 응력이 일정해지는 것은 실험적으로도 관찰되었다[26].

#### 4. 결 론

Onsager 이론으로 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델을 이용하여 전도성 입자로 제조된 전기유변 액체의 전기유변 현상에 대한 전산 모사를 수행하였다. 전단 흐름에서 전단응력이 정상상태에 도달하는 시점은 전기장 하에서 생성된 사슬 모양 구조가 전단 흐름에 의해 깨짐과 재생성이 정상상태에 도달하는 지점으로 나타났다. 정상상태에서 전단응력의 요동은 입자의 사슬 모양 구조의 재배열에 의한 변화임을 알 수 있었다. 확장된 Maxwell-Wagner 분극 모델의 단순화된 항복응력으로 비제곱 전기유변 현상이 예측되었으나, 여기서는 단순화 없이 전산 모사를 통해 확장된 Maxwell-Wagner의 비제곱 전기유변 현상( $\Delta\tau \propto E^n$ ,  $n \approx 1.5$ )을 관찰하였다.

전도성 입자를 기반으로 한 전기유변 액체들의 전기유변 현상에서 관찰되는 전단 속도의 증가에 따라 전단응력이 최솟값을 보이는 현상은 입자의 사슬 모양 구조가 무작위 배열로 바뀌는 순간에 발생하는 것으로 나타났다. 입자의 부피 분율  $\phi$ 가 증가에 따라 전단응력이 증가하다가 일정해지는 경향을 보였고, 높은  $\phi$ 에서는 다수의 입자로 응집된 사슬 모양의 형성으로 전극 사이에 형성된 사슬 모양의 수가 증가하지 않아 전단응력이 일정하였다.

## References

1. Winslow, W. M., "Induced Fibrillation of Suspensions," *J. Appl. Phys.*, **20**, 1137-1140(1949).
2. Deinega, Y. F. and Vinogradov, G. V., "Electric Fields in Rheology of Disperse System," *Rheol. Acta.*, **23**, 636-651(1984).
3. Shulman, Z. P., Gorodkin, R. G. and Korobko, E. V., "The Electrorheological Effects and Its Possible Uses," *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, **8**, 29-41(1981).
4. Hao, T., "Electrorheological Suspensions," *Adv. Colloid Interface Sci.*, **97**, 1-35(2002).
5. Liu, Y. D. and Choi, H. J., "Electrorheological Fluids: Smart Soft Matter and Characteristics," *Soft Matter*, **8**, 11961-11978(2012).
6. Block, H. and Kelly, J. P., "Electro-rheology," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **21**, 1661-1677(1988).
7. Kim, D. H. and Kim, Y. D., "Electrorheological Properties of Polypyrrole and its Composite ER Fluids," *J. Ind. Eng. Chem.*, **13**(6), 879-894(2007).
8. Filisko, F. E. and Ruzdiloski, L. H., "An intrinsic Mechanism for the Activity of Aumino-silicate Based Electrorheological Materials," *J. Rheo.*, **34**, 539-552(1990).
9. Otsubo, Y., Sakine, M. and Katayama, S., "Effect of Adsorbed Water on the Electrorheology of Silica Suspensions," *J. Coll. Interface Sci.*, **150**, 324-330(1992).
10. Kim, Y. D. and Klingenberg, D. J., "Two roles of Nonionic Surfactants on the Electrorheological Response," *J. Coll. Interface Sci.*, **168**, 568-578(1996).
11. Dong, Y. Z., Kwon, S. H., Choi, H. J., Puthiaraj, P. and Ahn, W., "Electroresponsive Polymer-Inorganic Semiconducting Composite (MCTP-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) Particles and Their Electrorheology," *ACS OMEGA*, **3**, 17246-17253(2018).
12. Noh, J., Yoon, C. M. and Jang, J., "Enhanced Electrorheological Activity of Polyaniline Coated Mesoporous Silica with High Aspect Ratio," *J. Coll. Interface Sci.*, **470**, 237-244(2016).
13. Lengalova, A., Pavlinek, B., Saha, P., Stejskal, J. and Quadrat, O., "Electrorheology of Polyaniline-coated Inorganic Particles in Silicone oil," *J. Coll. Interface Sci.*, **258**, 174-178(2003).
14. Stangroom, J. E., "Basic Considerations in Flowing Electrorheological Fluids," *J. Stat. Phys.*, **64**, 1059-1072(1991).
15. Kim, Y. D., "A Surfactant Bridge Model for the Nonlinear Electrorheological Effects of Surfactant Activated ER Suspensions," *J. Coll. Interface Sci.*, **236**, 225-232(2001).
16. Klass, D. L. and Martinek, T.W., "Electro-viscous Fluids," *J. Appl. Phys.*, **38**, 67-75(1967).
17. Klingenberg, D. J., Swol, F. and Zukoski, C. F., "Small Shear Rate Response of Electrorheological Suspensions I," *J. Chem. Phys.*, **94**, 6160-6169(1991).
18. Davis, L. C. and Ginder, J. M., "Electrostatic Forces in Electrorheological Fluids," *Progress in Electrorheology*, ed. by K.O. Havelka and F.E. Filisko, New York, Plenum, 107-111(1995).
19. Foulc, J. N., Atten, P. and Felici, N., "Macroscopic Model of Interaction between Particles in an Electrotheological Fluid," *J. Electrostatics*, **33**, 103-112(1994).
20. Parthasarathy, M. and Klingenberg, D. J., "Electrorheology: Mechanisms and Models," *Mater. Sci. Eng.*, **R17**, 57-103(1996).
21. Kim, Y. D., "Extended Maxwell-Wagner Polarization Model with Onsager Theory for Electrorheological Phenomena," *Korean Chem. Eng. Res.*, **56**, 767-722(2018).
22. Marshall, L. and Zukoski, C. F., "Effects of Electric Fields on the Rheology of Non-aqueous Concentrated Suspensions," *J. Chem. Soc.*, **85**, 2785-2795(1989).
23. Kim, Y. D., Choi, G. J., Sim, S. J. and Cho, Y. S., "Electrorheological Suspensions of Two Polarizable Particles," *Korean J. Chem. Eng.*, **16**, 338-342(1999).
24. Onsager, L., "Deviation from Ohm's Law in Weak Electrolytes," *J. Chem. Phys.*, **2**, 599-615(1934).
25. Kim, Y. D. and Park, D. H., "The Electrorheological Responses of Suspensions of Polypyrrole-coated Polyethylene Particles," *Colloid Polym. Sci.*, **280**, 828-834(2002).
26. Klingenberg, D. J., Swol, F. and Zukoski, C. F., "Small Shear Rate Response of Electrorheological Suspensions II," *J. Chem. Phys.*, **94**, 6170-6178(1991).