

03

Изучение особенностей пропитки сред с двумя масштабами пористости

© Э.С. Батыршин, О.А. Солнышкина, Ю.А. Питюк

Центр микро- и наномасштабной динамики дисперсных систем, Башкирский государственный университет, 450076 Уфа, Россия
e-mail: batyrshine@mail.ru

Поступило в Редакцию 10 августа 2020 г.

В окончательной редакции 20 октября 2020 г.

Принято к публикации 31 октября 2020 г.

Экспериментально изучены особенности захвата пузырьков при пропитке жидкостью микро модели среды с двумя масштабами пористости. Микро модель пористой среды образована системой цилиндрических столбиков, пространственно-упорядоченных в плоском микро канале. Показано, что содержание пустот в пористой среде после пропитки зависит от капиллярного числа и смачиваемости поверхности стенок пор. Предложенный подход можно использовать для решения практически важной задачи изучения и подбора оптимальных механизмов воздействия на процесс пропитки пористых материалов с целью минимизации количества образующихся пустот.

Ключевые слова: экспериментальная гидродинамика, двойная пористость, пропитка, микро модель, микро-флюидика.

DOI: 10.21883/JTF.2021.04.50617.244-20

Введение

Многофазные течения в пористых средах являются объектом активных исследований в течение длительного времени и их изучение остается актуальным в настоящий момент. Кроме исключительно научного интереса, эти исследования мотивированы поиском решений практических задач в различных отраслях промышленности. Свойства таких течений определяются значительным числом параметров, таких, как геометрические характеристики порового пространства, реология флюидов, смачиваемость поверхности пор флюидами, межфазное натяжение, механические свойства стенок пор и др. Особое место при описании порового пространства реальных пористых сред занимает концепция среды с двойной пористостью, впервые предложенная для описания фильтрации в трещиновато-пористых коллекторах при добыче нефти [1,2]. Среда с двойной пористостью состоит из пористых блоков с „первичной“ проницаемостью, разделенных между собой трещинами, формирующими область с „вторичной“ проницаемостью, которая может превышать „первичную“ на несколько порядков. Применение таких моделей наиболее актуально в карбонатных коллекторах, имеющих схожую структуру. Изначально предложенная в работе [1] данная концепция получила развитие в большом количестве последующих исследований. Например, в [3] предложен учет анизотропии трещиновато-пористой среды. Кроме того, для более точного описания процессов в пластах сланца с естественными трещинами и множественными гидроразрывами могут вводиться дополнительные масштабы пористости. В качестве третьего масштаба может рас-

считываться как неоднородность самой матрицы [4], так и неоднородность свойств трещин (малопроницаемые микротрещины и более проницаемые макротрещины) [5].

Представление о среде с двойной пористостью также используется для решения задач, связанных с изготовлением полимерных композитных материалов. Наиболее распространенный способ изготовления таких структур предполагает пропитку армирующего материала жидким связующим веществом, которое впоследствии отверждается [6]. Примером связующих являются часто используемые компаунды на основе эпоксидных и полиэфирных смол. Армирующий материал представляет собой текстиль, сотканный из нитей, которые состоят из сотен и тысяч отдельных волокон. Наиболее распространено использование стеклянных и углеродных волокон. В структуре такого материала явно выражены два характерных масштаба. Один из них связан с укладкой отдельных волокон в нити, а второй — с переплетением нитей для формирования текстильного полотна. Вследствие сильной неоднородности порового пространства армирующей волокнистой структуры, при его пропитке связующим образуются пузырьки газа, которые, оставаясь в структуре композита в виде пустот, значительно ухудшают его механические свойства [7]. Экспериментальные исследования показывают, что концентрация и структура пустот зависят от капиллярного числа, которое характеризует баланс между вязкими и капиллярными силами [8] при пропитке волокон полимером. Понимание механизма образования пустот требуется для разработки практических методов минимизации их количества при производстве композитов [9]. Экспериментальное изучение процесса образования от-

дельных пузырьков и их миграции в реальных средах, как правило, затруднено. Так, например, многослойное волокнистое армирование композитов содержит десятки и сотни тысяч отдельных волокон, при этом оптическая визуализация возможна только в поверхностном слое. Также сложность задачи связана с необходимостью проведения многопараметрических исследований, которые требуют хорошей воспроизводимости параметров образца, что не всегда можно обеспечить при использовании реальных пористых материалов. По этим причинам для детального изучения образования и движения пузырьков часто используются микромоделли, воспроизводящие те или иные особенности реальных сред в зависимости от целей и задач исследования [10–12]. Так, в работе [11] авторы использовали жидкостную ячейку, представляющую собой плоский канал, содержащий массив однонаправленных цилиндров, равномерно распределенных по гексагональной сетке. Каждый цилиндр в такой ячейке играет роль отдельного филамента комплексной нити волокнистого армирования композитов. Авторы использовали эту ячейку для изучения особенностей транспорта пузырьков в потоке вязкой жидкости в массиве цилиндров. Показаны характерные деформации, которые испытывают пузырьки или капли при течении сквозь систему цилиндров, и получены оценки их подвижности для различных размеров дисперсных включений. Кроме того, были определены критические величины капиллярного числа для мобилизации и деления дисперсных включений в зависимости от их размеров. В работе сделано заключение, что подвижность пузырьков в такой системе не определяется традиционным капиллярным числом, и необходимо определить другой безразмерный параметр, соотносящий геометрические размеры структуры и пузырьков с толщиной жидкой пленки, находящейся между пузырьком и твердой стенкой. Надо отметить, что изучению течений в каналах, содержащих массив цилиндров, посвящено значительное количество работ, мотивированных решением различных практических задач с использованием технологий „лаборатория на чипе“, жидкостной хроматографии, теплопереноса и др. [13–16]. Главным образом, в этих работах изучаются установившиеся однофазные течения после затекания жидкости в систему цилиндров.

В настоящей работе также использована микромодель пористой среды, образованная системой цилиндрических столбиков. Особенность данной микромодели заключалась в том, что столбики были пространственно упорядочены в структуру с двумя характерными пространственными масштабами, так что они формировали пористую среду с двойной пористостью. Целью настоящей работы являлось изучение особенностей образования пузырьков при пропитке такой среды вязкой жидкостью, а также влияния баланса капиллярных и вязких сил на этот процесс.

1. Методика эксперимента

Поровое пространство микромодели представляет собой широкий плоский канал, в котором распределены цилиндрические столбики (рис. 1). Столбики расположены группами в узлах гексагональной решетки так, что образуемое поровое пространство имеет два характерных масштаба. Микромодель изготовлена с применением стандартных методов мягкой литографии [17] с использованием негативного фоторезиста SU-8 2025 (MicroChem Corp.) и полимерного компаунда на основе полидиметилсилоксана (ПДМС) Sylgard® 184 (Dow Corning). Все стенки микроканалов в полученном устройстве были образованы полимером. Высота микроканалов была определена с помощью спектрометра HR2000+CG-UV-NIR (Ocean Optics Inc.) и составила $h = 35 \mu\text{m}$. Микромодель располагалась на столике оптического микроскопа Olympus IX71 (Olympus Corp.), оснащенного видеокамерой Infinity 2 (Lumenera Corp.) и соединялась трубками с источниками флюидов (рис. 2).

Сухая и чистая в исходном состоянии микромодель пропитывалась вязкой жидкостью под действием постоянного перепада давления, которое поддерживалось контроллером давления VSO-BT (Parker Hannifin). Процесс затекания жидкости в пористую структуру регистрировался на видеокамеру с фиксированной скоростью

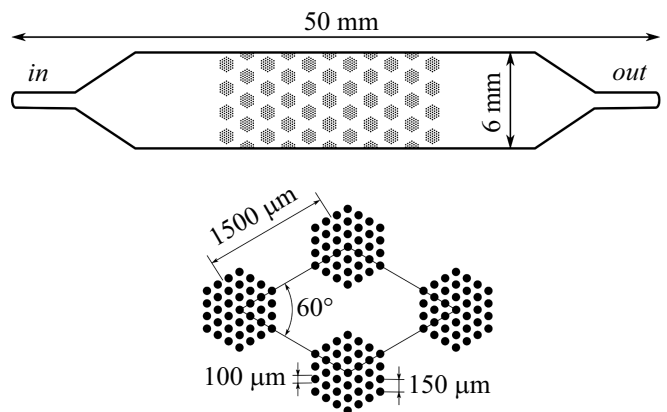


Рис. 1. Схематичное изображение структуры порового пространства микромодели.

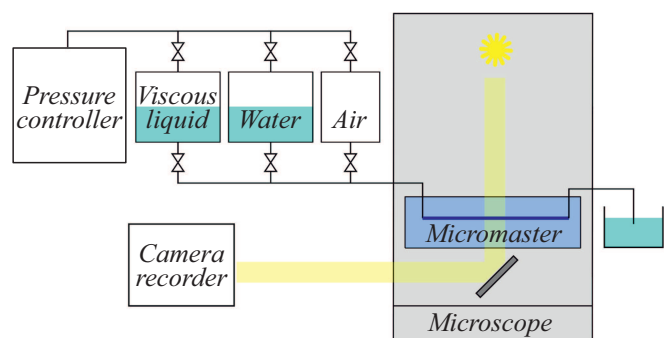


Рис. 2. Схема экспериментальной установки.

записи. После заполнения жидкостью микромодель промывалась деионизированной водой (Milli-Q Advantage A10, Millipore Corp.) и затем высушивалась потоком воздуха. Все эксперименты проводились при температуре $(25 \pm 1)^\circ\text{C}$. Жидкости для экспериментов выбирались таким образом, чтобы их вязкости были очень близки, а величины поверхностного натяжения на границе с воздухом различались. Кроме этого, вязкости были достаточно высокими, так что во всех экспериментах реализовывался ползущий режим течения жидкости. Выбранные жидкости плохо смачивали поверхность микроканалов, что усиливало влияние капиллярных сил на движение фронта жидкостей при пропитке. Были использованы две жидкости: 1 — раствор глицерин–пропиленгликоль с массовым содержанием глицерина 50%, 2 — раствор глицерин–вода с массовым содержанием глицерина 92%. Динамические вязкости растворов измерены при помощи вискозиметра Brookfield DVII+Pro (Brookfield АМТЕК) $\mu_1 \approx \mu_2 = (170 \pm 10) \cdot 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ в диапазоне скоростей сдвига от 5 до 50 s^{-1} при температуре $(25 \pm 0.2)^\circ\text{C}$. Контактные углы смачивания на границе раствор–ПДМС–воздух определены на оптическом тензиометре Attension Theta (Biolin Scientific) и составили $\theta_1 = (85 \pm 5)^\circ$, $\theta_2 = (100 \pm 5)^\circ$ для первого и второго раствора соответственно. Оценки величин поверхностного натяжения на границе жидкость–воздух приняты из литературных источников $\gamma_1 = 45 \cdot 10^{-3} \text{ N/m}$ [18], $\gamma_2 = 63 \cdot 10^{-3} \text{ N/m}$ [19]. Таким образом, для использованных жидкостей вклады вязких сил равны в пределах погрешности измерения вязкостей, а вклады капиллярных сил различны. Обработка и анализ изображений микроканальных структур производились помощью программного пакета ImageJ [20]. Величины перепада давления, при которых производилась пропитка структур, выбирались таким образом, чтобы капиллярное число $\text{Ca} = \mu v / \gamma$, находилось в диапазоне $10^{-3} - 10^{-2}$, где v — скорость движения межфазной границы, характеризующая соотношение между вкладами вязкого трения и поверхностным натяжением. В указанном диапазоне капиллярных чисел характеристики пропитки наиболее чувствительны к балансу между вязкими и капиллярными эффектами [9].

2. Результаты и обсуждение

На рис. 3 показаны контрастированные изображения одного и того же фрагмента пористой структуры микромоделли в различные моменты времени при заполнении жидкостью под действием перепада давления $\Delta P = 9 \text{ kPa}$. Последовательность на рис. 3, *a* соответствует заполнению жидкостью 1, а на рис. 3, *b* — жидкостью 2. На изображениях более темные области соответствуют сухим ненасыщенным областям порового пространства, светлые области заполнены жидкостью. Фронт насыщающей жидкости движется слева направо. Отчетливо видно, что фронт затекающей жидкости неод-

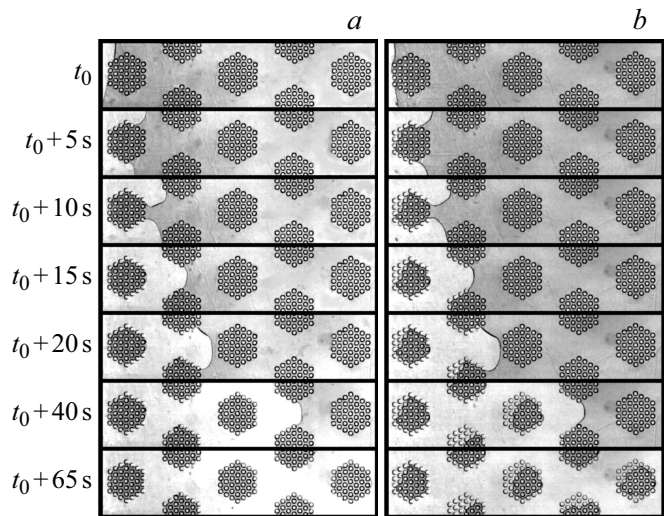


Рис. 3. Образование пустот при затекании жидкости в пористую структуру: *a* — жидкость 1, *b* — жидкость 2.

нороден. Жидкость преимущественно затекает по широким каналам между группами столбиков. Фронт жидкости внутри групп столбиков значительно запаздывает относительно фронта в широких каналах, что приводит к захвату газовых пузырьков внутри групп столбиков. Аналогичный процесс происходит при пропитке волокнистого армирования при изготовлении полимерных композитов: связующее быстрее заполняет пространство между нитями, в то время как сами нити, состоящие из большого количества отдельных волокон, пропитываются медленнее, что в итоге приводит к образованию полостей (пустот) внутри нитей. Отметим, что жидкость 2 практически не проникает в пространство внутри группы столбиков (рис. 3, *b*), в то время как жидкость 1 частично заполняет пространство между столбиками (рис. 3, *a*). Эксперименты, проведенные при различных перепадах давления в диапазоне от 5 до 65, показали, что степень заполнения жидкостью пространства внутри групп столбиков зависит от величины ΔP . Захваченные таким образом пузырьки оставались стабильными в течение эксперимента и не увлекались потоком жидкости. Из полученных в результате эксперимента видео было определено время прохождения фронтом жидкости пористой структуры (имеется в виду лидирующий фронт жидкости в широких каналах) и соответствующая ему средняя скорость движения фронта v . На рис. 4 показана зависимость $v(\Delta P)$. Видно, что для обеих жидкостей эта зависимость близка к линейной.

После пропитки порового пространства микромоделли оценивалась объемная доля образовавшихся пузырьков ϵ . Оценка величины производилась из анализа изображения всей пористой структуры и принималась равной удельной доле площади всех непропитанных жидкостью областей. Разметка областей и подсчет их площади производились в программе ImageJ. На рис. 5 показана зависимость содержания пустот в структуре после пропитки

от величины перепада давления. Для обеих жидкостей характер зависимости $c(\Delta P)$ практически одинаков: их объемная доля почти линейно уменьшается при увеличении перепада давления. Такая зависимость объясняется тем, что при затекании жидкости в пористую структуру приложенный перепад давления изменяется на величину капиллярного давления вследствие кривизны фронта жидкости. Вклад капиллярного давления может быть как положительным (увеличивать ΔP), так и отрицательным (уменьшать ΔP) в зависимости от контактного угла смачивания на границе фронта. Для обеих использованных жидкостей контактные углы, измеренные на стационарных сидячих каплях, близки или превышают 90° , в динамическом режиме (при движении фронта жидкости) эти углы будут больше стационарных углов. Это означает, что для обеих жидкостей капиллярный вклад отрицательный и будет уменьшать внешний приложенный перепад давления. Величина капиллярного давления может быть оценена с использованием соотношения [16]:

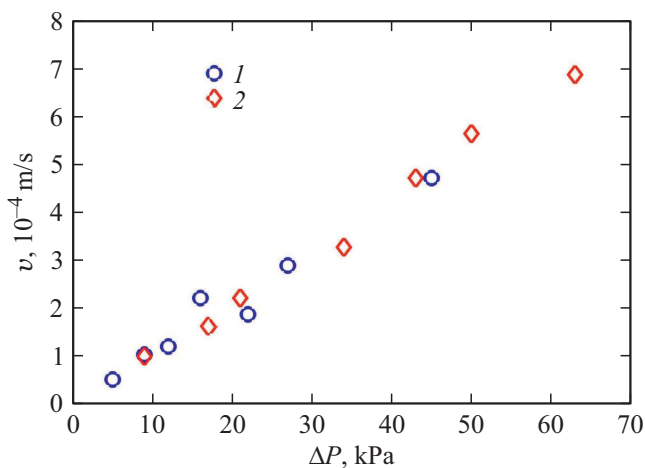


Рис. 4. Зависимость средней скорости движения фронта жидкости от перепада давления: 1 — жидкость 1, 2 — жидкость 2.

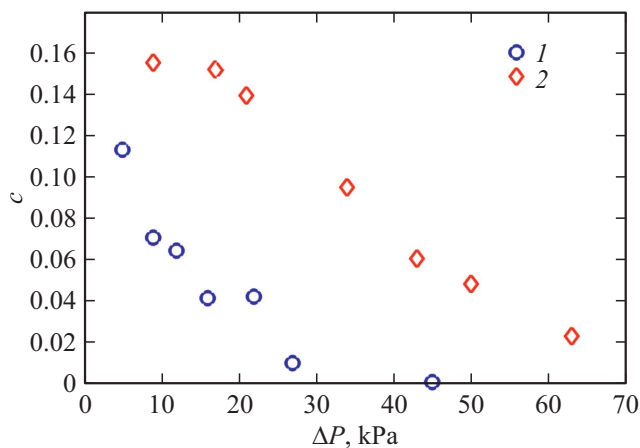


Рис. 5. Зависимость содержания пузырьков в пористой структуре после пропитки от перепада давления: 1 — жидкость 1, 2 — жидкость 2.

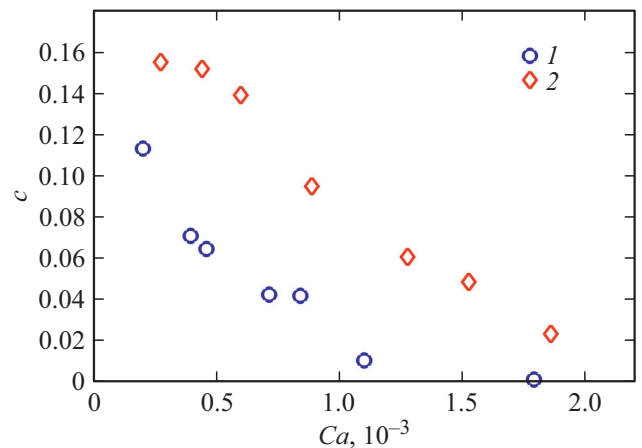


Рис. 6. Зависимость содержания пузырьков в пористой структуре после пропитки от капиллярного числа: 1 — жидкость 1, 2 — жидкость 2.

$p_c = -2\gamma \cos \theta(1/h + 1/w)$, где h , w — высота и ширина микроканала. Противодействие капиллярного давления в узких каналах внутри групп столбиков больше, чем в широких каналах, что ведет к запаздыванию фронта в узких каналах и образованию пузырьков. При увеличении приложенного перепада давления эффект капиллярных сил остается неизменным (если не учитывать зависимость контактного угла от скорости движения фронта), вклад вязких сил в распределение потока, напротив, нарастает, поскольку возрастает скорость движения фронта жидкости. В итоге уменьшение роли капиллярных сил ведет к снижению доли пузырьков в пропитанной структуре. Таким образом, увеличение перепада давления приводит к уменьшению количества пузырьков для двух типов рассматриваемых жидкостей, при этом для жидкости 2 эта зависимость сдвинута в сторону больших значений перепада давления (рис. 4). Такое различие обусловлено тем, что у жидкости 2 значение контактного угла смачивания больше, чем у жидкости 1, и превышает 90° , что говорит о большем противодействии капиллярных сил пропитке структуры внутри групп столбиков, что, в свою очередь, ведет к образованию большего количества пузырьков. Баланс вязких и капиллярных сил принято оценивать при помощи капиллярного числа Ca . Зависимости содержания пузырьков от капиллярного числа $c(Ca)$ показаны на рис. 6. Полученные зависимости очень похожи на зависимости от перепада давления, поскольку скорость движения фронта почти линейно растет с увеличением перепада давления. При малых Ca содержание пузырьков для жидкости 2 достигает возможного максимального предела $c \approx 0.16$, обусловленного геометрией порового пространства микромоделли. При увеличении капиллярного числа доля пузырьков уменьшается и для жидкости 1 достигает нулевого значения, т.е. происходит полная пропитка пористой структуры. Интересно отметить, что, несмотря на отсутствие полной аналогии, установленное

уменьшение количества пустот при увеличении капиллярного числа коррелирует с результатами исследований при изготовлении композитов [8], где минимум количества пустот наблюдался при капиллярных числах $Ca \approx 10^{-3}$.

Заключение

Таким образом, предложенный в работе подход с использованием микромоделей среды с двойной пористостью позволяет детально изучать захват и образование пузырьков при пропитке среды вязкой жидкостью. Определены зависимости объема захваченных пузырьков от капиллярного числа и условий смачиваемости. В дальнейшем данный подход будет использован для изучения возможных внешних механизмов воздействия на процесс образования пузырьков (например, акустическое воздействие и др.) с целью разработки практически значимых технологий для индустрии композитных материалов, нефтегазовой промышленности и др.

Финансирование работы

Разработка экспериментальной методики и изготовление микромоделей выполнены при поддержке Партнерской Программы Сколтеха, результаты экспериментальных исследований получены при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 18-38-20102.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] ГИ. Баренблатт, Ю.П. Желтов, И.Н. Кочина. Прикладная математика и механика, **24** (5), 852 (1960).
- [2] J.E Warren, P.J. Root. Soc. Pet. Eng. J. Society of Petroleum Engineers (SPE), **3** (03), 245 (1963).
- [3] П.Н. Вабищевич, А.В. Григорьев. Сиб. журн. вычисл. математики, **19** (1), 61 (2016).
- [4] H. Dehghanpour, M. Shirdel. Canadian Unconventional Resources Conference. Society of Petroleum Engineers, **3**, 184 (2011).
- [5] H.A. Al-Ahmadi, R.A. Wattenbarger, S. Arabia. Brazil Oil & Gas, tt_nrg and Norway Oil & Gas, **18** (2011).
- [6] V.A. Michaud. Transp. Porous Media, **115** (3), 581 (2016).
- [7] M. Mehdikhani, L. Gorbatikh, I. Verpoest, S. Lomov. J. Compos. Mater., **53** (12), 1579 (2019).
- [8] E. Ruiz, V. Achim, S. Soukane, F. Trochu, J. Breard. Compos. Sci. Technol., **66** (3), 475 (2006).
- [9] C.H. Park, W.I. Lee. J. Reinf. Plast. Compos., **30** (11), 957 (2011).
- [10] M.A. Abdelwahed, Y. Wielhorski, L. Bizet, J. Bréard. J. Compos. Mater., **48** (1), 37 (2014).
- [11] K. Kang, K. Koelling. Polym. Compos., **25** (4), 417 (2004).
- [12] J.J. Gangloff, C. Daniel, S.G. Advani. Int. J. Multiph. Flow, **65**, 51 (2014).
- [13] D. Guo, J. Gao, S. Santhanam, S.-C. Yao. J. Micromechanics. Microengineering., **24** (9), 095011 (2014).
- [14] Y. Ichikawa, K. Yamamoto, M. Motosuke. Microfluid. Nanofluidics, **22** (7), 1 (2018).
- [15] J.F. Tullius, T.K. Tullius, Y. Bayazitoglu. Int. J. Heat Mass Transf., **55** (15), 3921 (2012).
- [16] J. McGrath, M. Jimenez, H. Bridle. Lab Chip. Royal Society Chemistry., **14** (21), 4139 (2014).
- [17] Y. Xia, G.M. Whitesides. Annu. Rev. Mater. Sci., **28** (1), 153 (1998).
- [18] B.E. Poling, J.M. Prausnitz, J.P. O'Connell. *Properties of Gases and Liquid* (Fifth Edition. McGraw Hill Professional, Access Engineering, 2001).
- [19] C. Wohlfarth. *Surface tension of pure liquids and binary liquid mixtures* (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2008)
- [20] W.S. Rasband. ImageJ, U.S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland, USA, <https://imagej.nih.gov/ij/>, 1997-2018.