

Метаустабильность при вытеснении жидкости в ячейке Хеле–Шоу

Л. М. Мартюшев¹⁾, А. И. Бирзина

Уральский федеральный университет, 620002 Екатеринбург, Россия

Институт промышленной экологии УрО РАН, 620219 Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 6 февраля 2014 г.

Экспериментально изучается вытеснение воздухом (с постоянным расходом) силиконового масла в радиальной ячейке Хеле–Шоу. Изначально круглая граница раздела воздух–масло искажается контролируемым образом по гармоническому закону. Исследуется дальнейшая эволюция подобных возмущений. Показано, что существуют три характерные области в процессе вытеснения: устойчивая, метастабильная (в ней возмущение может либо исчезать, либо развиваться) и неустойчивая. Обнаружено, что с увеличением амплитуды возмущения ширина метастабильной области растет. Полученные результаты количественно подтверждают теоретические значения бинодали и спинодали (границ метастабильной области), предсказанные ранее для данного морфологического перехода.

DOI: 10.7868/S0370274X14080050

1. Введение. Переходы от одной формы фазовой границы к совершенно другой у развивающейся во времени структуры широко распространены в природе. Наиболее известным их примером является рост ледяных кристаллов (снежинок) в пересыщенной водяными парами атмосфере [1, 2]. В этом случае в процессе роста, начиная с некоторого размера, происходит переход от шестиугольных пластинок к дендритным структурам. Подобные переходы, наблюдаемые в открытых неравновесных системах, называют морфологическими. Они составляют большой и важный практически подкласс неравновесных (или кинетических) переходов, интенсивное изучение которых происходит в последнее время (см., например, [1–3]). Одной из важных задач, возникающих при изучении морфологических переходов, является предсказание размера (времени роста) структуры, после которого произойдет переход от одной формы роста к другой. Существуют две модельные системы, на которых традиционно изучаются морфологические переходы. Одна из них относится к кристаллизации зародышей в пересыщенной/переохлажденной среде, вторая – к вытеснению одной жидкостью другой в ячейке Хеле–Шоу (два очень близко расположенных параллельных стекла).

В случае роста кристаллов с помощью методов линейной и нелинейной теории возмущений и анализа производства энтропии [4–6] обнаружено, что существуют три области размеров растущего кристалла. При малых размерах кристалл всегда со-

храняет свою форму, лишь увеличиваясь в размере. При значительных размерах исходная форма всегда неустойчива и кристалл приобретает новую форму (например, дендритную). При промежуточных размерах (временах) кристалл в зависимости от истории роста и существующих возмущений (внешних воздействий) может как сохранять свою прежнюю форму, так и приобрести новую. Таким образом, при промежуточных размерах кристалла возможно так называемое сосуществование различных морфологических фаз. Эту область принято называть метастабильной. Важным моментом является то, что согласно существующей теории [4–6] при увеличении интенсивности (амплитуды) воздействия переход от исходной к новой форме роста происходит раньше по времени (при меньших размерах). Этот результат был подтвержден численно на ряде кристаллических моделей [7, 8]. Однако из-за существующих технических сложностей реализации подобных кристаллизационных опытов экспериментального подтверждения данного факта получено не было.

Изучение морфологических превращений при вытеснении жидкости проводится в ячейке Хеле–Шоу [9–13]. При этом более вязкая жидкость вытесняется с помощью менее вязкой. Если вытеснение происходит из центра ячейки (так называемое радиальное вытеснение), то изначально круглая граница раздела жидкостей приобретает сложную форму. Теоретическое исследование этого перехода во многом подобно исследованию роста кристаллов. Здесь также аналитически получаются три характерных этапа: устойчивый, метастабильный и неустойчивый [14–

¹⁾e-mail: LeonidMartyushev@gmail.com

16]. Количественного экспериментального подтверждения данной теоретически предсказанной закономерности также нет. Однако, в отличие от кристаллизации, экспериментальное исследование морфологических переходов при вытеснении жидкостей в ячейке Хеле–Шоу оказывается технически существенно более простой задачей (прежде всего с точки зрения внесения контролируемых возмущений поверхности). Проведение подобного исследования является важной задачей не только с точки зрения верификации теоретических подходов, существующих в физике морфологических переходов, но в плане лучшего понимания закономерностей формообразования, происходящих в природе. Такое исследование и стало целью настоящей работы.

2. Краткий обзор полученных ранее результатов. Рассматривается вытеснение одной жидкости ($i = 2$) другой менее вязкой жидкостью ($i = 1$) в ячейке Хеле–Шоу (жидкости не смешиваются и не сжимаются). Ячейка представляет собой два плоскопараллельных круглых стекла размера R_∞ , находящихся на расстоянии b . Вытесняющая жидкость поступает с постоянным расходом Q , через центральное отверстие радиуса R_0 . Пусть μ_i – вязкость жидкости, а σ – поверхностное натяжение между двумя жидкостями. Искажение изначально круглой поверхности раздела жидкостей представляется в виде $r = R + \delta_0 \cos(n\varphi)$, где R – радиус круглой поверхности раздела, δ_0 – амплитуда возмущения, n – мода возмущения, r, φ – полярные координаты.

Первое подробное аналитическое изучение морфологической устойчивости при радиальном вытеснении можно найти в работе [16]. В ней в линейном приближении рассчитывалась скорость роста бесконечно малого возмущения круглой границы. Движение считалось квазидвумерным. Все характеристики потока усреднялись по толщине ячейки. Ячейка считалась бесконечной, а источник, откуда поступала жидкость – точечным ($R_\infty \rightarrow \infty, R_0 = 0$). Был найден радиус устойчивости поверхности раздела. Достигнув этого размера, поверхность раздела жидкостей становится морфологически неустойчивой по отношению к бесконечно малым возмущениям. Хотя расчеты, проведенные в работе [16], позволили качественно описать явления, наблюдаемые в эксперименте, они имели ряд недостатков. Во-первых, полученное решение ничего не говорит о том, что будет происходить с так называемым трансляционным возмущением ($n = 1$). Во-вторых, при решении использовалось предположение о том, что на границе раздела двух жидкостей давление претерпевает скачок, описываемый формулой Лапласа: $2\sigma/b + \sigma K$, где

K – кривизна поверхности в плоскости движения. Очевидно, что это классическое равновесное условие в рассматриваемой задаче о движущейся границе раздела является достаточно грубым предположением. В-третьих, в работе нет никаких указаний на то, как будет происходить потеря устойчивости, если возмущение границы раздела не является бесконечно малым (в частности, будет ли критический радиус устойчивости уменьшаться, увеличиваться или останется без изменений).

Уточнение условия Лапласа для рассматриваемой задачи было проведено в работе [17]. В ней предполагалось, что вытесняемая жидкость полностью смачивает стенки, оставляя на них тонкую пленку по мере вытеснения. В результате анализа была получена следующая приближенная формула для скачка давления: $2\sigma/b + \alpha V^\gamma + \beta K$, где $\alpha = 7.6\sigma(\mu_2/b)^\gamma/b$, $\beta = \pi\sigma/4$, $\gamma = 2/3$, V – скорость движения поверхности раздела. Здесь явно учитывается влияние скорости движения жидкости на форму поверхности раздела (второе слагаемое). Кроме того, введена поправка, учитывающая изменения формы поверхности по толщине ячейки (третье слагаемое). Как было показано в [14], критический размер устойчивости R_S относительно n -й гармоники с учетом этого условия и произвольных размеров ячейки (R_∞, R_0) в линейном порядке теории возмущений будет определяться из численного решения уравнения

$$1 + nF = 0, \quad (1)$$

$$F = \left(\frac{M_2}{M_1} - 1 \right) \left(1 + \left[(n^2 - 1) \frac{\beta}{R} - \alpha\gamma \left(\frac{Q}{2\pi R} \right)^\gamma \right] \times \right. \\ \left. \times \frac{2\pi}{Q} \frac{M_1 M_2}{M_2 - M_1} \right) \left[\frac{M_2}{M_1} \frac{1 + (R_0/R)^{2n}}{1 - (R_0/R)^{2n}} + \frac{1 - (R/R_\infty)^{2n}}{1 + (R/R_\infty)^{2n}} + \right. \\ \left. + n\alpha\gamma \left(\frac{Q}{2\pi R} \right)^\gamma \frac{2\pi M_2}{Q} \right]^{-1},$$

где $M_i = b^2/12\mu_i$.

Детальный анализ этого решения и особенностей, возникающих при таком описании вытеснения, представлен в работе [14]. Отметим только, что размер устойчивости при рассмотрении уточненных условий на границе раздела становится на десятки процентов меньше по сравнению с найденной ранее величиной [16].

Линейный анализ морфологической устойчивости не в состоянии ответить на вопрос о том, куда сдвинется критический размер устойчивости, если возмущение границы раздела будет не бесконечно малым. Вместе с тем с точки зрения практики и экспериментальной проверки теоретических предсказа-

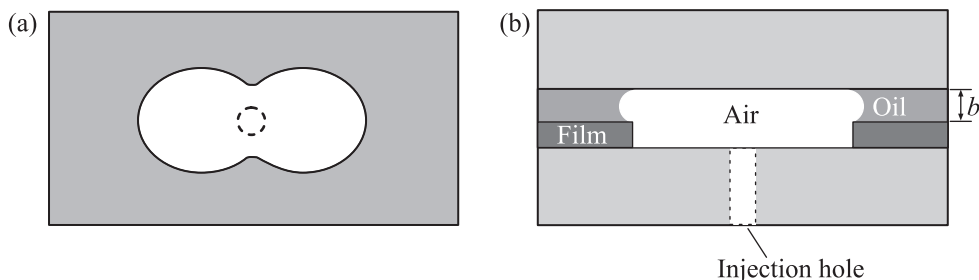


Рис. 1. Центральная часть ячейки Хеле-Шоу. Вид сверху (a) и сбоку (b)

ний этот вопрос является актуальным. Действительно, трудно ожидать в реальном эксперименте исключительно возмущений, относящихся к разряду бесконечно малых. Исследование влияния не бесконечно малых возмущений на устойчивость границы раздела при радиальном вытеснении в ячейке Хеле-Шоу было осуществлено в работах [20, 21]. В этих работах проведен слабонелинейный анализ задачи. Получено уравнение для скорости роста возмущения. Показано, что взаимодействие между модами возмущения лежит в основе расщепления образующихся при потере устойчивости границы “пальцев”. В работе [15] для анализа устойчивости поверхности раздела в случае конечной величины амплитуды возмущения используются методы неравновесной термодинамики. На основе ранее полученных (и численно подтвержденных) результатов, относящихся к морфологической устойчивости растущего кристалла, в работе [15] выдвигается следующая гипотеза: с увеличением амплитуды возмущений размер (радиус) устойчивости будет уменьшаться до значения R_b , которое можно определить, сравнивая производства энтропии в единичном объеме вблизи искаженной и неискаженной движущейся поверхности раздела двух жидкостей. В результате значение R_b может быть найдено из решения уравнения [15]

$$1 + 2nF = 0. \quad (2)$$

Согласно [15] на интервале размеров от R_b до R_S поверхность раздела жидкостей будет либо морфологически неустойчивой, либо устойчивой в зависимости от амплитуды возмущения. Эта область и получила название метастабильной. При достаточно больших амплитудах переход от устойчивой (круглой) границы к неустойчивой будет происходить при R_b (этот размер получил название бинадали по аналогии с терминологией, существующей в физике равновесных фазовых переходов). При бесконечно малых амплитудах возмущения морфологический переход будет происходить при R_S (этот размер получил название спинодали).

подавляющее большинство экспериментальных работ посвящено исследованию эволюции уже потерявшей устойчивость поверхности раздела (рассматривались количество, скорость роста и форма “пальцев”) [13, 22–25]. Первой и единственной попыткой экспериментальной проверки приведенных выше теоретических выводов является работа [26]. В ней проводилось измерение размера устойчивости границы при радиальном вытеснении воздухом силиконового масла. Возмущений границы в этой работе явно не происходило. При этом предполагалось, что в реальной системе они всегда в той или иной степени присутствуют. Результаты экспериментов [26] косвенно указывали на наличие метастабильной области при длинноволновых возмущениях границы раздела. Однако данные эксперименты не давали возможности количественно проверить теоретически предсказанные значения R_b и R_S . Дело в том, что возмущений на начальной стадии вытеснения оказывалось достаточно много и они взаимовлияли друг на друга.

3. Методика эксперимента и анализа данных. Подробное описание экспериментальной установки, применяемой в данной работе, можно найти в [26]. Геометрические параметры используемой радиальной ячейки Хеле-Шоу составляли $R_0 = 5$ мм, $R_\infty = 100$ мм, $b = 0.6$ мм. По сравнению с работой [26] нами было внесено важное дополнение: на нижнее стекло ячейки наклеивалась пленка толщиной 0.64 мм. В пленке вырезалась область, форма которой задается уравнением в полярных координатах вида $r_0 = R + \delta \cos(n\varphi)$. При этом центром области являлось отверстие для подачи воздуха (т.е. размер r_0 представлял собой расстояние от центра ячейки до границы вырезанной области). Граница $r_0(\varphi)$ представляла собой ступеньку, форма которой повторяет контур желаемого начального возмущения (рис. 1), а высота соответствует толщине пленки. Это новшество, предложенное ранее в [27], позволяло создавать у границы раздела вытесняемых жидкостей начальное возмущение заданной формы. Как и ранее [26], мы исследовали вытеснение воз-

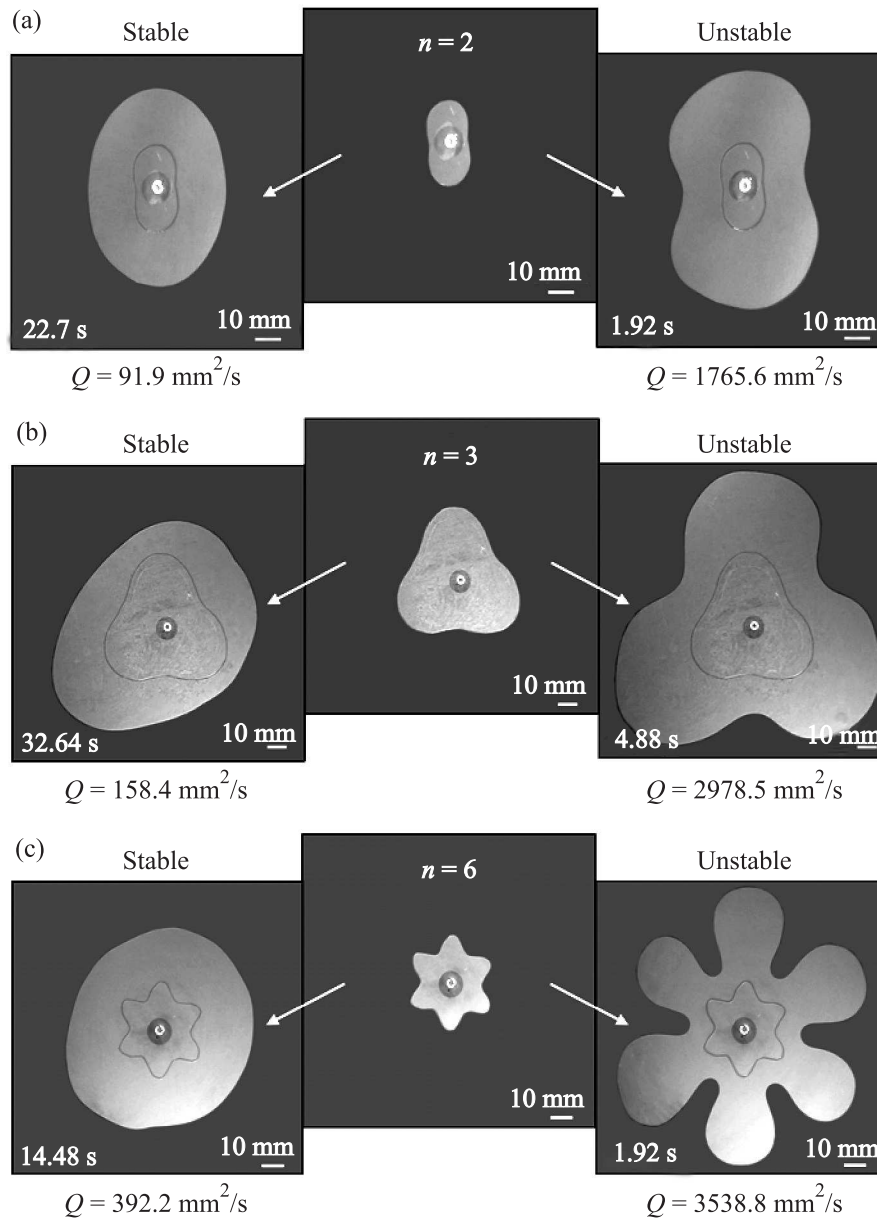


Рис. 2. Примеры устойчивого и неустойчивого вытеснения, наблюдаемого в эксперименте. Возмущение δ/R равно 0.4 (a), 0.2 (b) и 0.2 (c)

духом силиконового масла ПМС-5. При температуре 300 К это масло имеет следующие характеристики: динамическая вязкость $\mu = 4.4 \cdot 10^{-3}$ Па \cdot с, плотность $\rho = 910$ кг/м³, поверхностное натяжение с воздухом $\sigma = 18.1 \cdot 10^{-3}$ Н/м.

В начале каждого эксперимента ячейка медленно заполнялась с внешней стороны силиконовым маслом. Когда масло достигало ступеньки на границе пленки, оно останавливалось из-за капиллярного давления. После этого начиналось вытеснение масла воздухом с заданным постоянным расходом. Квазидвумерные структуры, образуемые поступающим в

ячейку с маслом воздухом, записывались на видеокамеру.

Все технические детали, связанные с выделением и обработкой фазовой границы структур, можно найти в [26]. Морфологическая устойчивость границы оценивалась по наиболее выпуклым/вогнутым локальным местам границы. Если кривизна этих участков уменьшается со временем, то граница считается в целом устойчивой, а если увеличивается – не устойчивой. В настоящей работе исследовалась только начальная стадия потери морфологической устойчивости.

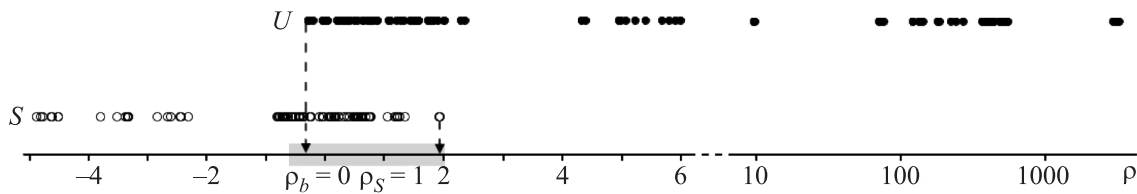


Рис. 3. Экспериментальные данные по устойчивости (S) и неустойчивости (U) границы раздела в зависимости от безразмерного размера (радиуса) ρ области, занятой воздухом. Серая полоса соответствует предсказываемой теорией метастабильной области (с учетом погрешностей величин, участвующих в ее расчете). Представлены результаты 208 экспериментов (для всех амплитуд возмущения)

Было проведено в общей сложности 208 экспериментов с начальными возмущениями различной амплитуды (δ/R от 0.1 до 0.4) и модами $n = 2, 3$ и 6. Расход Q изменялся в диапазоне от 87.6 до 3576.8 мм²/с. Для сравнения результатов подобных опытов с результатами теории [14, 15] полученные экспериментальные данные обезразмеривались следующим образом.

1. Для каждого эксперимента рассчитывались теоретические значения R_b и R_S . Согласно формулам (1) и (2) при известных Q и n это можно сделать однозначно.

2. По известному начальному искажению $R + \delta(t_0) \cos(n\varphi)$ и полученным значениям R_b и R_S проводилось следующее преобразование: $\rho = (R - R_b)/(R_S - R_b)$.

3. В результате такого преобразования безразмерный радиус ρ мог принимать значения от $-R_b/(R_S - R_b)$ до $+\infty$.

Как следует из теории [14, 15], поверхность раздела устойчива (S) при $\rho < 0$, устойчива или неустойчива (S или U) при $0 < \rho < 1$ и неустойчива (U) при $\rho > 1$. Из опыта непосредственно получается информация об устойчивости или неустойчивости для каждого ρ . Ее можно легко сравнить с теоретически предсказываемой.

4. Результаты и обсуждение. Ряд полученных структур, дающих качественное представление о возможных морфологических превращениях фазовой границы, приведен на рис. 2. Как видно, в зависимости от скорости вытеснения (расхода) изначально возмущенная поверхность межфазной границы может оказаться устойчивой или неустойчивой. Также отметим, что при малых расходах поверхность на начальной стадии вытеснения всегда устойчива, а при больших – всегда неустойчива.

Основные экспериментальные результаты работы приведены на рис. 3 и 4. Ниже следует их обсуждение.

1. Экспериментально обнаружены три области размера ρ с различным поведением границы раз-

дела фаз при вытеснении. Это устойчивая область, неустойчивая область и переходная (метастабильная) область, где вытеснение может быть как устойчивым, так и неустойчивым. Перекрывание значений S и U в метастабильной области связано с различной амплитудой возмущений, изначально наложенных на границу. Как видно из представленных на рис. 3 данных, экспериментально обнаруженные границы областей попадают в область, обозначенную серым цветом (метастабильная область, предсказанная теоретически). Отметим, что ширина “серой метастабильной области” на рис. 3 находится в интервале, несколько большем, чем от 0 до 1. Это связано с погрешностью расчета R_b и R_S по имеющимся экспериментальным параметрам. Анализ (1) и (2) показывает, что основной вклад эту в погрешность вносит точность в определении толщины ячейки (в нашем случае равная 0.05 мм). В целом относительная ошибка определения R_b и R_S составляет 17%. Эта погрешность и приводит к увеличению размера теоретически предсказываемой метастабильной зоны.

2. Экспериментально показано, что амплитуда возмущения влияет на точку начала перехода. При этом с увеличением амплитуды начало метастабильной области сдвигается к размеру ρ_b , как этого и требует теория (рис. 4). Из рис. 4 видно, что ширина метастабильной области (перекрытие областей S и U) с уменьшением амплитуды возмущения существенно уменьшается. Данный факт ранее не обсуждался в теории. Является ли он некоторой новой фундаментальной закономерностью, или этот результат связан лишь с какими-то методическими аспектами проведения и обработки эксперимента, принятым в данной работе? Этот вопрос требует дополнительного исследования. На рис. 4 представлены результаты для возмущений с амплитудами $\delta(t_0) = 0.1R$ и $0.4R$. Возмущающие амплитуды менее $\delta(t_0) = 0.1R$ не исследовались, так как в этом случае сравнимыми по амплитуде с накладываемой гармоникой оказываются плохо контролируемые случайные возмущения (в особенности трансляционные, $n = 1$). В результате

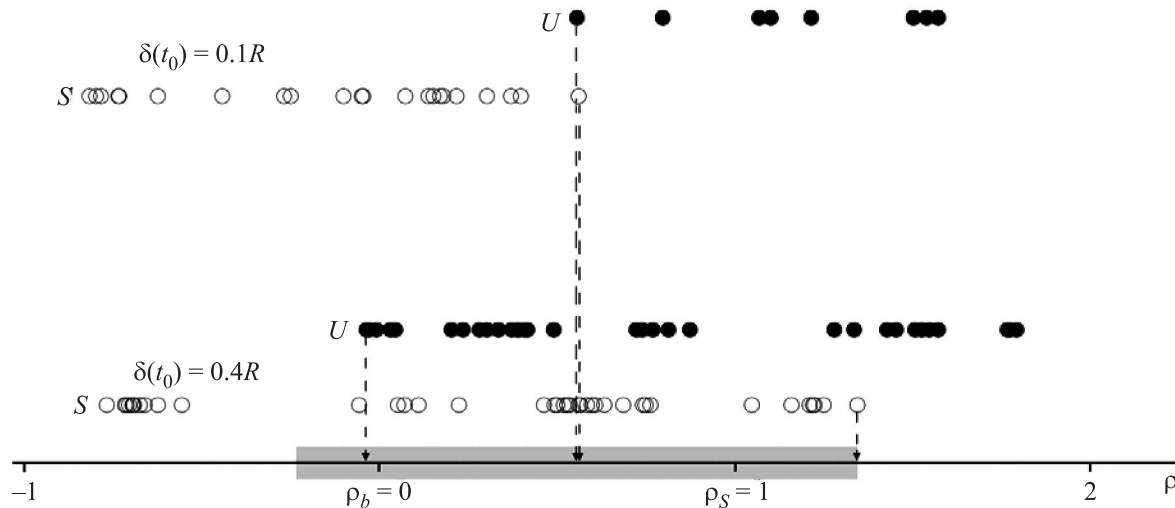


Рис. 4. Влияние двух возмущающих амплитуд $\delta(t_0)$. Экспериментальные данные по устойчивости (S) и неустойчивости (U) границы раздела в зависимости от безразмерного радиуса ρ области, занятой воздухом. Серая полоса соответствует предсказываемой теорией метастабильной области (с учетом погрешностей величин, участвующих в ее расчете). Каждая точка – результат одного эксперимента

возникает взаимовлияние сравнимых по амплитуде гармоник. Это, несомненно, очень интересная задача для исследования. Однако целью данной работы было изучение поведения одиночных возмущений, так как только для этого случая получены уравнения (1) и (2) и возможно количественное сравнение эксперимента и теории. Амплитуды более $\delta(t_0) = 0.4R$ не использовались из-за технологической сложности приготовления подобных возмущений. В этом случае у воздушной области, вырезанной в пленке, возникает слишком большая кривизна. Как следствие при заполнении ячейки силиконовым маслом необходимая форма воздушной области не сохраняется, существенно сглаживаясь.

Заключение. Настоящее исследование впервые экспериментально обнаруживает три области (устойчивую, метастабильную и неустойчивую) при морфологическом переходе, а также указывает на зависимость границ этих областей от амплитуды возмущений. Как видно из представленных на рис. 3 и 4 данных, полученные результаты количественно согласуются с теоретическими предсказаниями. Однако несмотря на достаточно большое число экспериментов, по нашему мнению, проведенных исследований пока недостаточно для того, чтобы сделать окончательный вывод о справедливости методов расчета метастабильной области, предложенных в [14, 15]. Для большей уверенности необходимы дополнительные исследования по вытеснению других пар жидкостей, в том числе с близкими вязкостями.

Мы благодарим А.П. Сергеева, В.В. Швецова и Р.Д. Бандо за помощь при решении ряда технических вопросов и при проведении некоторых экспериментов, обсуждавшихся в данной работе.

1. E. Ben-Jacob, *Contemp. Phys.* **34**(5), 247 (1993).
2. E. Yokoyama and T. Kuroda, *Phys. Rev. A* **41**(4), 2038 (1990).
3. H. Haken, *Synergetics*, Springer, N.Y. (1978), p. 419.
4. Л. М. Мартюшев, В. Д. Селезнев, И. Е. Кузнецова, *ЖЭТФ* **118**, 149 (2000).
5. Л. М. Мартюшев, И. Е. Кузнецова, В. Д. Селезнев, *ЖЭТФ* **121**, 363 (2002).
6. Л. М. Мартюшев, Е. М. Сальникова, Е. А. Червонцева, *ЖЭТФ* **125**, 1128 (2004).
7. L. M. Martyushev and E. A. Chervontseva, *Phys. Lett. A* **373**, 4206 (2009).
8. L. M. Martyushev and E. A. Chervontseva, *EPL (Europhys. Lett.)* **90**, 10012 (2010).
9. P. G. Saffman and G. Taylor, *Proc. Roy. Soc. A* **245**, 312 (1958).
10. D. Bensimon, L. P. Kadanoff, S. Liang, B. I. Shraiman, and Ch. Tang, *Rev. Mod. Phys.* **58**(4), 977 (1986)
11. G. M. Homsy, *Ann. Rev. Fluid Mech.* **19**, 271 (1987).
12. D. A. Kessler, J. Koplik, and H. Levin, *Adv. Physics* **37**(3) 255 (1988).
13. K. V. McCloud and J. V. Maher, *Phys. Report* **260**, 139 (1995).
14. L. M. Martyushev and A. I. Birzina, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 045201 (2008).

15. L. M. Martyushev and A. I. Birzina, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 465102 (2008).
16. L. Paterson, *J. Fluid Mech.* **113**, 513 (1981).
17. C.-W. Park and G. M. Homsy, *J. Fluid Mech.* **139**, 291 (1984).
18. A. Buka, P. Palfy-Muhoray, and Z. Racs, *Phys. Rev. A* **36**, 3984 (1987).
19. E. Ben-Jacob, G. Deutscher, P. Garik, N. D. Goldenfeld, and Y. Lareah, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1903 (1986).
20. J. A. Miranda and M. Widom, *Physica D* **120**, 315 (1998).
21. E. Alvarez-Lacalle, E. Pauné, J. Casademunt, and J. Ortin, *Phys. Rev. E* **68**, 026308 (2003)
22. J.-D. Chen, *Experiments in Fluids* **5**, 363 (1987).
23. M. Sastry, A. Gole, A. G. Banpurkar, A. V. Limaye, and S. B. Ogale, *Current Science* **81**, 191 (2001).
24. S. N. Rauseo, P. D. Barnes, and J. V. Maher, *Phys. Rev. A* **35**, 1245 (1987).
25. S. B. K. Burns and S. G. Advani, *Experiments in Fluids* **21**, 187 (1996).
26. L. M. Martyushev, A. I. Birzina, M. S. Konovalov, and A. P. Sergeev, *Phys. Rev. E* **80**(6), 066306 (2009).
27. E. Alvarez-Lacalle, J. Ortin, and J. Casademunt, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 054501 (2004).