

2

Quebra de gotas no Escoamento através de um Capilar com Garganta

2.1

Estado da arte

2.1.1

Introdução

Dispersões são sistemas conformados por pelo menos duas fases imiscíveis, onde uma das fases encontra-se dispersa na outra, chamada de fase contínua. As dispersões que têm como fase contínua um líquido, podem ser classificadas, segundo a fase que encontra-se dispersa (indicada entre parênteses, a seguir), em: espumas (gás), emulsões (líquido) e suspensões (sólido). Becher [18] menciona no seu livro outras cinco possibilidades, ainda que menos comuns, de uma fase se encontrar dispersa na outra: líquido em sólido, sólido em sólido, gás em sólido, líquido em gás e sólido em gás.

Em concordância com Salager [19], as dispersões também podem ser classificadas de acordo com as dimensões da fase dispersa (gotas, bolhas ou partículas), em soluções moleculares, coloidais e dispersões, conforme mostrado na Fig.2.1 .

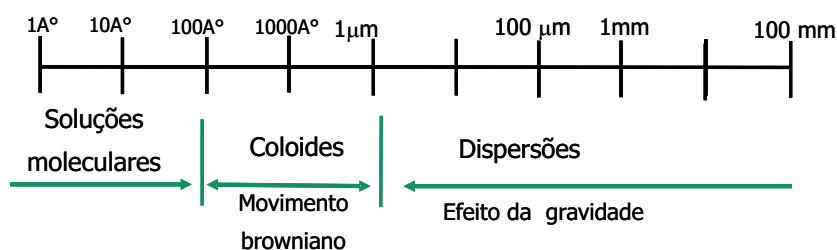


Figura 2.1: Classificação das dispersões segundo as dimensões da fase dispersa.

Este trabalho é focado em emulsões. Emulsões estão presentes em diversos processos industriais, como na manufatura de fitas adesivas, tintas, alimentos, cosméticos, no projeto de medicamentos com dosagem controlada e praticamente em todas as etapas da produção de petróleo. As emulsões são geralmente estabilizadas por um surfactante. Um surfactante é uma substância anfifílica, contendo moléculas com regiões tanto hidrofílicas (polares, afins à água) quanto lipofílicas (não polares, afins aos óleos). Estas moléculas agem através da diminuição da tensão interfacial entre duas fases líquidas e da criação de forças estéricas repulsivas entre as gotas, inibindo assim a coalescência entre elas.

Devido a sua estrutura, as moléculas de surfactante tendem a se localizar na interface entre o óleo e a água, ou entre a água e o ar. Porém, existe uma concentração superficial acima da qual a interface fica saturada. As moléculas de surfactante excedentes ficam em solução em uma das fases e formam diferentes tipos de aglomerados, conhecidos como micelas. A concentração de surfactante na qual observa-se o início da formação de micelas é conhecida como concentração micelar crítica (CMC). Acima deste valor, a tensão atinge o seu valor mínimo e não se altera significativamente com a concentração.

Representações de uma molécula de surfactante e da formação de uma micela são apresentadas na Fig.2.2 [20].

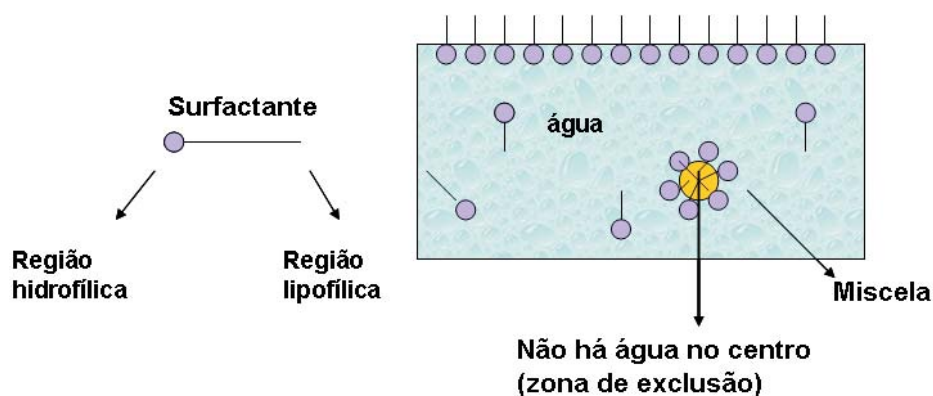


Figura 2.2: Formação de micelas.

Existe um parâmetro que permite caracterizar os agentes tensoativos, e escolher o mais adequado para cada tipo de emulsão que se deseja preparar. Esse valor característico é conhecido como Balanço Hidrofílico-lipofílico (HLB; “Hydrophilic Lipophilic Balance”, em inglês). A Tab.2.1 apresenta as

Faixa	Aplicação
3-6	Emulsificante W/O
7-9	Agente Molhante
8-18	Emulsificante O/W
13-15	Detergente
15-18	Solubilizador

Tabela 2.1: Algumas faixas de HLB e as suas aplicações.

aplicações recomendadas segundo algumas faixas de valor deste parâmetro [18].

As emulsões podem ser classificadas na base em diferentes aspectos. Becher [18] distingue as emulsões nas chamadas macroemulsões e nas microemulsões, conforme mostrado na Tab. 2.2. A estabilidade “infinita” das microemulsões não tem sido verificada experimentalmente por razões práticas. Microemulsões são caracterizadas pela existência de tensões interfaciais ultrabaixas (na ordem ou menores do que 10^{-2} mN/m).

A respeito das fases que compõem a emulsão, estas podem ser classificadas como emulsões de óleo em água (O/W), emulsões de água em óleo (W/O) e emulsões múltiplas (W/O/W ou O/W/O). A Fig.2.3 ilustra esta classificação.

Na base no grau de estabilidade cinética, as emulsões podem ser classificadas como: Grossas (“loose emulsion”), aquelas que separam em poucos minutos, médias (“medium emulsion”), que podem ser separadas em dez minutos ou mais, e muito pequenas (“tight emulsions”), que podem se separar, algumas só parcialmente, em horas ou dias [21].

As emulsões podem ser produzidas de forma espontânea ou controlada. A produção controlada de emulsões envolve normalmente um processo mecânico de cisalhamento (agitação mecânica), um escoamento submetido a extensão, ou processos físico-químicos, separados ou combinados. A agitação mecânica acompanhada da adição de agentes químicos (surfactante) é talvez o método mais comum de formação de emulsões polidispersas em escala industrial. Muitas vezes, a aplicação da emulsão exige que as gotas da fase dispersa sejam todas de dimensões bem controladas, como na produção de medicamentos e tinta eletrônica, por exemplo. Nestes casos, as emulsões são obtidas normalmente através de escoamentos em capilares com divisões

Propriedade	Macro	Micro
Componentes	óleo-água-surfactante	óleo-água-surfactante
Número de surfactante	Um ou mais	Ao menos dois
Tipos de surfactante	Todos	Todos
Concentração de surfactante	Medianamente baixo	Medianamente alto
Tamanho das gotas	Microns	0.01-0.001 microns
Estabilidade Termodinâmica	Instável	Estável
Estabilidade no armazenamento	Dependente da formulação	Infinita (?)

Tabela 2.2: Macroemulsões vs Microemulsões.

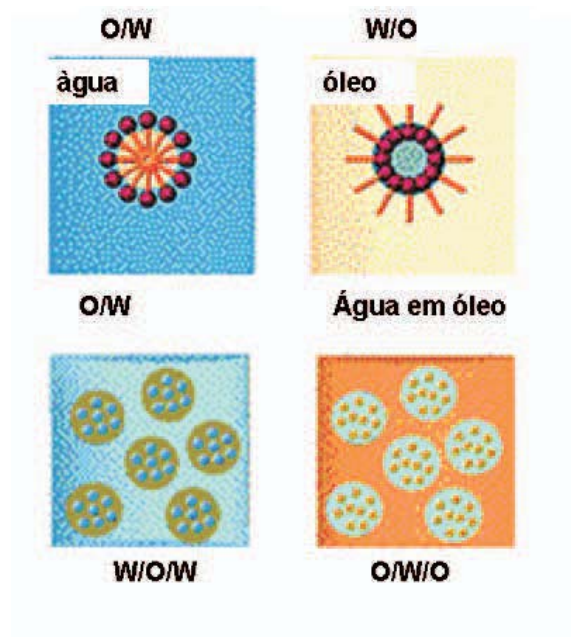


Figura 2.3: Classificação das emulsões segundo as fases que a compõem.

sucessivas, como discutido em [22, 23].

A geração espontânea de emulsões acontece quando dois líquidos imiscíveis de composição química específica entram em contato, mesmo em ausência de aplicação de alguma energia mecânica. Em todos os casos, há evidência de que um material tensoativo encontra-se fora do equilíbrio

químico, e portanto este é um fenômeno de transferência de massa através da interface; em muitos casos a emulsão coalesce rapidamente [16]. Tal fenômeno é usado para preparar emulsões pesticidas de uso agrícola ou veterinário, e tem sido proposto como um possível método de recuperação terciária por injeção de surfactante [16]; esta última aplicação foi descrita no capítulo anterior.

A geração espontânea de emulsões durante a produção de petróleo pode ocorrer quando entram em contato as fases óleo e água. Conforme dito antes, os ácidos orgânicos normalmente presentes nos óleos pesados podem ser neutralizados por álcalis formando surfactantes “in situ” [15]. O álcali está normalmente presente na água original do reservatório.

A emulsificação de sistemas óleo-água nos reservatórios pode ocorrer, além do processo de emulsificação espontânea, por causa do escoamento do sistema bifásico através de um complexo sistema de gargantas de poros interconectadas. Um dos mecanismos para geração de emulsões no meio poroso, nas velocidades típicas dentro de reservatório, é o chamado “snap-off”, o qual é um tipo de quebra de gota, que será detalhado mais diante.

Segundo Davies G. A. et al. [6] e Sarbar [8], M.A. et al., as emulsões produzidas em reservatório podem ser estabilizadas, adicionalmente, pela presença de outros componentes do óleo, tipicamente frações pesadas de óleo tais como asfaltenos e possíveis sólidos suspensos. A denominação de asfaltenos refere-se aos componentes mais pesados e polares do petróleo, que são insolúveis em n-heptano (e em outros alcanos lineares como n-nonano, n-pentano o n-propano), e solúveis em tolueno [24]. Então, as moléculas de asfaleno possuem regiões polares e apolares, as primeiras solúveis em água e as segundas em alguns dos componentes do petróleo, e acaba agindo como um surfactante. A Fig. 2.4 ilustra tal fenômeno [21].

O estado da mistura óleo e água na saída do reservatório influi na morfologia nas emulsões observadas nas instalações de superfície, porém ainda não é claro onde são formadas (e/ou a morfologia modificada), dentro dos reservatórios ou no escoamento turbulento através de bombas, válvulas e tubulações. Além disto, a formação de emulsões no reservatório é um fenômeno de extrema importância em alguns métodos de recuperação.

Alguns trabalhos de pesquisa são orientados a estudar a geração de emulsões em capilares pequenos, que são usados como modelo da geometria dos canais em meios porosos. Segundo Rossen [25], os experimentos em tubos constrictos não são representativos do que acontece no meio poroso, mas existem outras opiniões no meio científico que sugerem o contrário, baseados em resultados experimentais. Cuthiell et al. [5] estudaram a

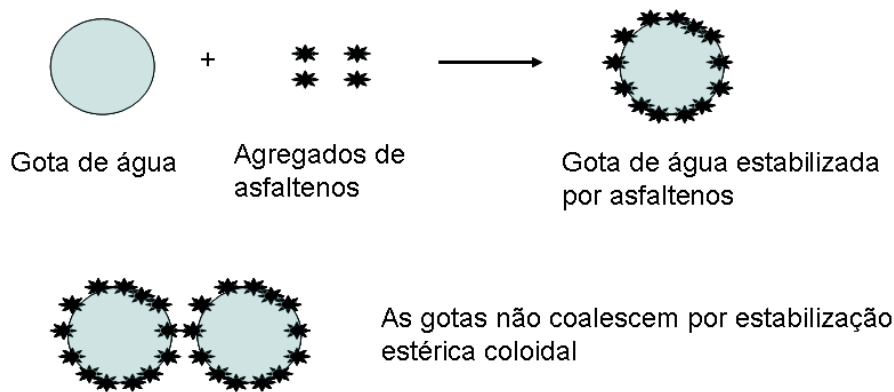


Figura 2.4: Estabilização de emulsões de gotas de água pela ação de partículas de asfaltenos na superfície da gota.

geração de emulsões no escoamento bifásico dentro de uma amostra de meio poroso. Os autores usaram tanto óleo mineral quanto óleo de reservatório nos seus experimentos. Eles observaram que as emulsões foram geradas na mesma faixa de números de capilaridade testadas, para ambos óleos usados. Seus resultados sugerem que o número de capilaridade da fase oleosa, definido como $\frac{V_o \mu_o}{\sigma}$ (V_o : velocidade do óleo, μ_o : viscosidade do óleo, σ : tensão interfacial entre o óleo e a água) é um número adimensional que descreve as condições em que acontece emulsificação, e tais condições foram achadas como sendo números de capilaridade entre 10^{-4} e 10^{-3} , os quais são valores encontrados em regiões perto do poço, durante as operações de recuperação de óleo pesado[5].

Gaulitz et al. [26] relacionaram os gradientes de pressão com permeabilidades, nos seus experimentos em testemunhos porosos. Eles concluem que a geração de espumas (pelo mecanismo “snap-off”), é uma função do raio da garganta do poro e da distância entre alguns grupos de poros. Assim, uma análise na escala de um capilar, além de ajudar a entender o mecanismo de quebra de gotas em capilares, pode ser usada para determinar o que ocorre em um meio poroso, para aplicações na recuperação de petróleo.

2.1.2 Mecanismos de geração de emulsões em capilares

Existem diferentes mecanismos de rompimento de gota no escoamento através de um capilar. Dependendo das condições do escoamento, tais como número de capilaridade, geometria e molhabilidade do canal, razão de viscosidades dos fluidos envolvidos, razão de densidades, razão de diâmetros gota/garganta de poro, gradientes de concentração de surfactante e natureza

físico-química das fases, entre outros, pode-se favorecer o surgimento de um ou outro mecanismo. O efeito de cada um destes fatores, além de outros parâmetros importantes no fenômeno, será discutido mais adiante.

Neste ponto, e devido a sua importância no fenômeno de quebra de gotas dentro de um capilar, é importante definir o número de capilaridade, como sendo um parâmetro que descreve a razão entre forças viscosas e interfaciais.

$$Ca = \frac{\mu V}{\sigma} \quad (2-1)$$

Onde:

- Ca : Número de capilaridade,
- μ : Viscosidade da fase contínua,
- V : Velocidade característica do escoamento,
- σ : Tensão interfacial entre os dois líquidos.

Os principais mecanismos de quebra de gotas de um líquido imerso em outro líquido discutidos na literatura são apresentados a seguir. No que segue, vai se chamar de “fase contínua” o fluido que envolve uma gota e “fase dispersa” a fase que compõe as gotas.

“Snap-off”.

Este mecanismo pode ser descrito basicamente como uma invasão de fase molhante escoando adjacente à parede da garganta do poro, estando tal constrição ocupada por uma fase não molhante. O filme molhante na garganta do poro (constrição, no caso de um capilar constrito) cresce como um colar, até criar discontinuidades na fase não molhante (quebra de gota). A Fig.2.5 ilustra este fenômeno.

Olbricht [27] descreve o “snap-off” na seguinte forma: quando a fase não-molhante se move através de uma constrição, a valores de número de capilaridade próximos de zero, um colar da fase molhante é formado em torno da gota na constrição, conforme é mostrado na Fig.(2.5). Devido à grande curvatura da interface da gota na constrição, a pressão da fase contínua é mais baixa na constrição do que longe dela. Esta diferença de pressão provoca um escoamento da fase molhante na direção da constrição, a espessura do filme da fase molhante cresce, e o “snap-off” acontece. Segundo o mesmo autor, para valores de Ca próximos de zero, o tempo para o “snap-off” acontecer depende da geometria, que determina a diferença de pressão que governa o escoamento.

Ratulowski e Chang [28] descrevem dois tipos de “snap-off” de bolhas, dependendo se a constrição for mais ou menos abrupta, chamando de

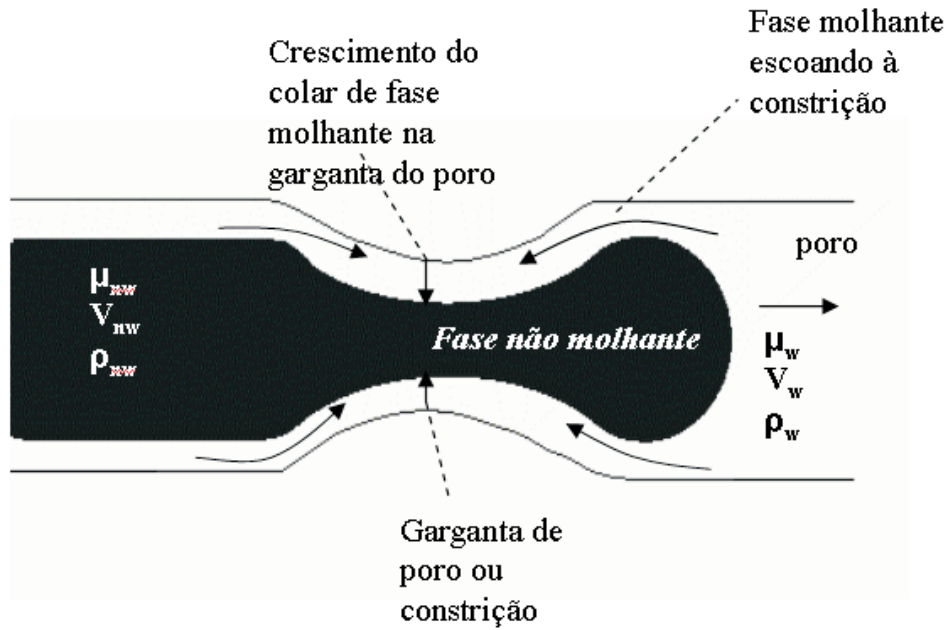


Figura 2.5: Mecanismo “Snap-off” num meio poroso para um sistema tendo água como fase contínua. Os sub índices “w” correspondem à fase molhante, e “nw” à fase não molhante.

“mecanismo de instabilidade” àquele que acontece no primeiro caso e por “drenagem” ao segundo. Os autores afirmam que no caso de drenagem, o raio das bolhas produzidas é maior do que o raio da garganta de poro, enquanto que no caso de o mecanismo de instabilidade, o raio das bolhas produzidas é da mesma ordem do que o raio da constrição.

O mecanismo “snap-off” tem sido amplamente estudado para explicar a geração de espumas em reservatórios de petróleo, e em menor grau para o caso de geração de emulsões. Roof [29] estudou os efeitos da geometria do canal sobre o “snap-off” de um tapão de fase não molhante usando um modelo experimental para um sistema óleo/água. Os resultados dos experimentos mostraram concordância com a teoria de que, para uma dada forma da constrição, há um tamanho mínimo da frente da gota de óleo que sobressai da garganta e permite o mecanismo de “snap-off”. Se o capilar fosse molhado pela fase aquosa, para a forma da constrição toroidal, o óleo pode sobressair uma distância de ao menos sete vezes o raio da garganta antes de acontecer “snap-off”. O mesmo autor afirma que o “snap-off” só acontece se existe grande diferença entre os diâmetros do tubo e do poro, pelo menos uma relação de diâmetros de 2:1 [29].

Rossen fez uma ampla revisão acerca da geração de espumas em meios porosos através do mecanismo “snap-off”. Ele apresenta uma extensa e

completa revisão deste mecanismo [25]. Ele conclui que a perda de carga através da constrição para o “snap-off” acontecer depende da geometria garganta-poro, e que, de acordo com o critério de Roof, o “snap-off” para quando o poro jusante é enchido com uma ou mais bolhas ou gotas, tal como ilustrado na figura 2.6 [30].



Figura 2.6: Descrição da interrupção do mecanismo “Roof’s snapoff” no meio poroso, segundo Rossen, por preenchimento do poro contíguo à garganta.

Um parâmetro importante na revisão feita por Rossen [25], é a chamada “pressão capilar de entrada” na ponta de uma bolha, na garganta de um poro de seção transversal circular, definida como sendo:

$$P_{c_e} = \frac{2\sigma}{R_c} \quad (2-2)$$

Onde:

- R_c : Radio circunferencial na constrição,
- σ : Tensão Interfacial.

Depois de que a ponta da bolha passa através da constrição, a pressão capilar na garganta cai para o valor $P_{c_{sn}}$. Para gargantas cilíndricas circulares, $P_{c_{sn}} = P_{c_e}/2$. Para construções suaves, o valor de $P_{c_{sn}}$ pode também ser aproximado como $P_{c_{sn}} = P_{c_e}/2$.

O fenômeno “snap-off” numa garganta de poro dentro de um meio poroso pode ser simulado fisicamente mediante o escoamento de um sistema bifásico através de um capilar constrito.

Ruptura de uma gota por cisalhamento.

Um dos mecanismos de ruptura de gotas por cisalhamento é chamado “tipstreaming” por De Bruijn [31]. Segundo o autor, é o modo de ruptura de uma gota submetida a escoamentos simples de cisalhamento e na presença de gradientes de concentração de surfactante na superfície da gota. A gota adquire uma forma de “s” (forma “sigmoidal”) e rompe na forma de fluxo (nos extremos) de gotas muito menores, conforme é ilustrado na Fig.2.7 [31].



Figura 2.7: Descrição do mecanismo “tipstreaming”.

De Bruijn [31] também conclui que as gotas resultantes teriam um raio duas ordens de grandeza menor, e tensões interfaciais muito menores do que a gota original. De acordo com Eggleton et al., o mecanismo tipstreaming acontece a vazões muito menores que aquelas típicas para outros mecanismos de rompimento de gota, e que, logo após de ejetar as gotas-filhas, as gotas-mães adquirem uma forma estável [32].

Uma outra variação deste tipo de quebra é descrito por Eggleton et al. [32] e Janssen e col. [9]. Eles observaram um outro tipo de mecanismo de quebra a altas concentrações de surfactante. Eles dão o nome de “tipdropping”, ilustrado na Fig.2.8. Neste tipo de mecanismo, as gotas produzidas são menores e são ejetadas mais intermitentemente em comparação ao caso de tipstreaming.

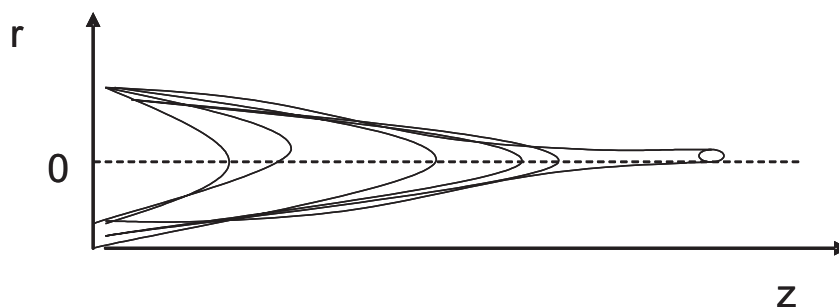


Figura 2.8: Descrição do mecanismo “tipdropping”.

Fratura. Para gotas com viscosidade maior que o líquido que a contém, o mecanismo de quebra acontece por estiramento da gota na direção axial [33].

Este mecanismo está presente também na tecnologia de microfluidos e de soluções poliméricas. O mecanismo é ilustrado na Fig.2.9 [31].

Formação de canais na parte posterior da gota. Este mecanismo acontece de forma diferente dependendo da viscosidade da gota. Para gotas com baixas viscosidades, a quebra é iniciada por este mecanismo, e logo a gota se rompe em fragmentos. No caso de gotas com viscosidade maior que o líquido que a contém, a quebra da gota pode acontecer (dependendo



Figura 2.9: Descrição do mecanismo fratura.

do tamanho da gota em relação ao tubo) pela presença simultânea de este mecanismo e do mecanismo de fratura [33].

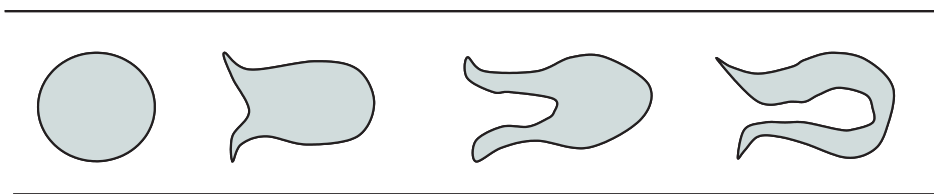


Figura 2.10: Descrição do mecanismo por invasão da fase contínua na parte posterior da gota.

2.1.3

Fatores que influenciam a deformação e o rompimento de gotas em capilares e em meios porosos

A deformação e quebra de gota (e, portanto, a formação de emulsões) em capilares e meios porosos dependem de diversos fatores. Estes são discutidos a seguir

1. Número de capilaridade (Ca). Este parâmetro adimensional foi definido na Eq.(2-1), e como foi dito antes, expressa uma razão entre as magnitudes de forças viscosas e forças interfaciais. O número de capilaridade influencia significativamente a deformação e o “snap-off” de gotas escoando através de capilares. Este parâmetro representa a razão entre a resistência viscosa ao escoamento da fase molhante adjacente à parede do capilar e a diferença de pressão capilar, que gera escoamento da fase molhante na direção da garganta. Abaixo de um certo valor crítico de número de capilaridade, chamado neste trabalho de número crítico de capilaridade, acontece a quebra de gota.

Diversos autores estudaram o efeito do número de capilaridade na deformação e quebra de uma gota num capilar [34, 35, 36, 33, 27, 29]. De acordo com Olbricht e Kung (1992), o valor crítico de número de capilaridade na ruptura da gota depende do tamanho da gota e da razão de

viscosidades [33]. Khayat et al. [34] observaram nos seus experimentos que o diâmetro crítico para quebra de gota decresce se a vazão aumenta, e encontraram uma relação linear entre o tempo para a quebra e a velocidade em que a quebra acontece. Janssen [2] apresenta resultados dos seus experimentos em escoamentos tanto em microcanais quanto em meio poroso, e observou diferentes mecanismos para a quebra de gota, de acordo com o número de capilaridade do escoamento.

2. Gradiente de pressão. As condições de pressão influenciam as propriedades da interface gota/fase contínua [10]. No escoamento bifásico num capilar constrito, ou através de uma garganta de poro, por causa da geometria, existem gradientes de pressão capilar na interface curva entre os dois líquidos. Segundo Olbricht [27], o movimento da gota através da constrição, para valores pequenos de número de capilaridade, é governado pelos gradientes de pressão capilar associados à variação da curvatura da gota. Esta diferença de pressão dá origem a um escoamento da fase molhante.

É necessário uma diferença de pressão na direção do escoamento para uma gota (ou bolha) passar pela constrição do capilar ou pela garganta do poro [37, 27]. Segundo Legait et al. [37], esta diferença diminui com o aumento da razão do número de Reynolds com o número de capilaridade, independente da molhabilidade do meio, volume da gota, e razões de densidades e viscosidades.

A diferença de pressão capilar induz um escoamento de fase molhante na direção da garganta do capilar, o que pode causar a quebra de gota. Em concordância com Gaulitz et al.(2002), o “snap-off” para a geração de espumas no meio poroso depende da dinâmica da pressão capilar local na garganta do poro. Os autores estimaram o valor da diferença de pressão capilar, para o caso de uma bolha de gás suspensa em um líquido e passando através de uma constrição. Para o caso de uma gota suspensa num líquido e passando através de uma constrição, o escoamento é ilustrado na Fig.2.11. Se a pressão da gota é considerada constante entre as regiões (1) e (2), a diferença de pressão capilar entre tais regiões é definido como [38]:

$$P_{L1} - P_{L2} = \sigma \left(\frac{1}{R_2} - \frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_3} \right), \quad (2-3)$$

onde:

P_{Li} Pressão do líquido no ponto i ,

σ Tensão interfacial,

do cisalhamento que a parede do capilar exerce sobre a superfície da gota. Durante a extração de petróleo, podem acontecer reduções na permeabilidade do meio poroso quando as emulsões presentes tem razão de diâmetros gota/poro perto da unidade [11]. Quando o tamanho da gota e o diâmetro do canal são comparáveis, as paredes afetam a forma da gota, o qual afeta a mobilidade da gota e a sua contribuição com a resistência hidráulica ao escoamento [27]. Olbricht e Kung [33], nos experimentos no capilar circular reto, determinaram que o número de capilaridade crítico para ruptura da gota aumenta a medida que o diâmetro da gota decresce. Khayat et al. [34], realizaram experimentos num canal convergente-divergente e observaram que gotas alongadas colocadas no eixo do escoamento, deformam-se menos que gotas curtas da mesma seção transversal.

5. Molhabilidade do canal. Um conceito importante na formação de emulsões no escoamento de óleo e água em meios porosos é a definição do ângulo de contato de um líquido com uma superfície sólida, conforme mostrado na Fig. 2.12[9]. O líquido é molhante quando $\theta < 90^\circ$ e não molhante quando $\theta > 90^\circ$.

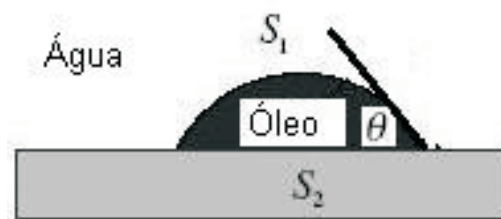


Figura 2.12: Ângulo de contato θ .

Segundo Janssen et al.[9] as características da mistura água/óleo que emerge do meio poroso são fortemente influenciadas pela molhabilidade do meio. Quando o meio poroso é molhado pelo óleo, o petróleo é produzido majoritariamente em forma de gotas relativamente grandes; no caso contrário, as gotas produzidas são pequenas, de dimensões similares as dos poros do reservatório.

6. Geometria do canal. A geometria do canal é uma das variáveis mais importantes determinação da deformação ou do mecanismo de quebra no escoamento bifásico na escala capilar. De acordo com Olbricht e Leal [36], o efeito qualitativo da geometria depende fortemente da relativa importância das forças viscosas comparadas com a tensão interfacial, para o seus experimentos em particular. Num capilar com garganta, a quebra

de uma gota mediante o mecanismo “snap-off” é fortemente influenciada pela diferença de pressão capilar da fase molhante, nas regiões adjacentes à constricção, conforme descrito no item (2). Estes gradientes são fortemente dependentes da geometria do capilar.

Olbricht e Leal [36] determinaram que a geometria do tubo pode ter grande influência na deformação de uma gota. Segundo Olbricht [27], no limite do número de capilaridade tendendo a zero, o tempo necessário para o “snap-off” acontecer depende da geometria do tubo, a qual determina a diferença de pressão que provoca o escoamento no filme de fluido. Olbricht e Kung [33] afirmam que em um meio poroso não consolidado, gotas com diâmetros muito maior que os poros rompem-se varias vezes, até que o tamanho das gotas resultantes tornam-se similares ao dos poros. Khayat et al. [34] observaram rompimento de gotas em outras menores, na entrada da convergência num escoamento plano, posterior ao estiramento da gota nessa posição do canal. Também observaram que, dependendo do tamanho da gota, esta poderia deformar sem o rompimento acontecer. Roof [29] estudou os efeitos de geometria do canal sobre o “snap-off” de um tampão de fase não molhante usando um modelo experimental para um sistema óleo/água. Neste trabalho foi determinado que o tamanho do poro afeta a taxa de “snap-off”. Rossen [30] afirma que a magnitude exata da diminuição da pressão capilar necessária para o “snap-off” depende da geometria da garganta. O autor assinala também que a presença de quinas, gretas e rugosidades também influenciam o mecanismo “snap-off”, já que influenciam o escoamento da fase molhante através do filme na parede. Olbricht e Leal [36] trabalharam em um capilar com diâmetro que variava sinusoidalmente, o que permitiu determinar que nesta geometria as gotas quebram, enquanto que em um capilar reto, e para um conjunto equivalente de parâmetros materiais, não se produziriam deformação e quebra. Tsai [39] encontrou diferentes mecanismos de quebra de gota segundo a geometria do canal (reto ou constrito).

Um exemplo da importância da geometria sobre a quebra de gota, é a tecnologia de microfluidos, na qual, são projetados microcanais, cuja estrutura é um dos fatores mais determinantes da morfologia das emulsões monodispersas obtidas.

7. Taxa de cisalhamento. As emulsões podem ser formadas em um escoamento com cisalhamento de dois líquidos imiscíveis [23]. Para alguns escoamentos, o número de capilaridade é definido como função da taxa de cisalhamento [31]:

$$Ca = \frac{\mu \dot{\gamma} r}{\sigma} \quad (2-4)$$

Sendo:

- Ca : Numero de capilaridade
- μ : Viscosidade do fluido (fase contínua)
- $\dot{\gamma}$: taxa de cisalhamento
- r : Raio da gota
- σ : Tensão Interfacial

No caso do estudo de quebra de gota mediante o mecanismo “tipstreaming”, por exemplo, este parâmetro é chave. Isto pode ser observado nos resultados apresentados por Bruijn [31].

A taxa de cisalhamento é também extremamente importante no processo de emulsificação em escoamentos turbulentos. As altas taxas de cisalhamento no escoamento através de válvulas geram emulsões de diâmetros de gotas entre 2 a 10 μm nas condições normais de operação.

8. Gradientes de concentração de surfactante na superfície da gota. O gradiente de concentração de surfactante na superfície de uma gota que escoar por um canal, produzidos por efeitos de cisalhamento devido às paredes, geram a quebra da gota pelo mecanismo “tipstreaming”, descrito na seção anterior. Os gradientes de concentração de surfactante geram tensões cisalhantes na interface, que modificam o padrão do escoamento (efeito Marangoni).

Outro efeito importante do gradiente de concentração de surfactante é associado com o mecanismo “snap-off” no escoamento através de uma constricção, como será explicado a seguir. Depois que a parte frontal da gota passa pela constricção, o surfactante se acumula na superfície da gota, na garganta. Esta acumulação produz a queda significativa na tensão interfacial local, o que acarreta no incremento do número de capilaridade efetivo na constricção, e este fica maior que na parte “limpa” da gota. Isto aumenta a quantidade de fluido molhante que se acumula na constricção, acelerando desta forma o processo de “snap-off”.

9. Natureza físico-química dos fluidos envolvidos. São diversas as formas em que a natureza das fases pode afetar a geração de emulsões dentro de capilares. Gotas de líquidos elásticos são hidrodinamicamente mais estáveis que gotas de líquidos Newtonianos no escoamento em canais convergentes [40]. Sólidos finos que se alojam na interface estabilizam as emulsões formadas [10, 41]. Emulsões de petróleo são estabilizadas por filmes interfaciais rígidos que formam uma “pele” sobre gotas e prevêm a coalescência [21]. Um exemplo prático é o caso das emulsões em óleos com altos conteúdo

de asfaltenos e resinas, nos quais tais componentes estabilizam as emulsões produzidas, evitando assim a coalescência [4, 10]. O mecanismo de estabilização pela presença de asfaltenos foi descrito na introdução deste capítulo (veja Fig.2.4). Os asfaltenos, resinas e alguns sólidos inorgânicos como calcita, e podem também, reduzir a tensão interfacial entre a água e o óleo [2].

Um outro exemplo é o caso de geração espontânea de emulsões, devido à composição química das fases. No escoamento num capilar ou através de um meio poroso, a quebra de gotas seria influenciada pela formação de surfactantes “in situ”, e não apenas pelo escoamento bifásico através de gargantas de poro ou constrições, ou pelo efeito de cisalhamento na parede, no caso de um capilar.

Um outro exemplo é a presença de grandes quantidades de ácido durante processos de estimulação, que resulta em emulsões muito finas [41].

10. Razão de densidades dos fluidos envolvidos. O ajuste das densidades é muito importante no experimento; diferenças de 0.003 na gravidade específica causam desvios da gota da linha central do capilar [33]. Tais desvios estão associados a um maior o menor efeito de cisalhamento da parede do capilar sobre a gota, conforme descrito no item 11.

11. Posição inicial da gota no capilar. Mediante simulações experimentais e numéricas, Khayat et al. [34] determinaram que o deslocamento inicial da gota influencia a taxa e a magnitude da deformação, levando a uma maior ou menor influência de alongação ou cisalhamento. Isto influencia as deformações que eventualmente poderiam gerar uma quebra de gota.

Segundo Olbricht, a baixos números de Reynolds, o escoamento é dominado pelos fatores: razão de viscosidades, razão de viscosidades [inicial da gota/tubo] e número de capilaridade [27].

2.2 Objetivos

Grande parte da literatura apresentada na seção anterior trata de uma análise quantitativa processo de quebra de bolhas (gás), i.e. processo de formação de espumas. O problema de quebra de gotas é tratado de forma qualitativa e não existe uma forma que considere todas as variáveis relevantes na previsão das condições nas quais uma gota escoando através de um capilar com garganta irá quebrar, levando a um processo de emulsificação. O objetivo desta parte do estudo é estender a análise de geração de espuma

em meio poroso à formação de emulsão devido a quebra de uma gota de líquido quando ele escoar através de uma garganta de poro, a números de capilaridade típicos do escoamento dentro de um reservatório de petróleo (10^{-6} a 10^{-3}). Na análise, levou-se em conta os efeitos da geometria da garganta de poro, da razão de viscosidades entre as fases, κ , e do número de capilaridade do escoamento, com o intuito de desenvolver uma metodologia simplificada que permita prever a geração de emulsões em capilares e em meios porosos, a partir de algumas informações básicas do escoamento.

2.3

Procedimento Experimental e Materiais

O trabalho de pesquisa experimental nesta tese foi desenvolvido no Laboratório de Microfluidodinâmica e Meios Porosos do Departamento de Engenharia Mecânica da PUC-Rio.

O estudo dos mecanismos de formação de emulsões num meio poroso foi feito através de análise na escala de poros. A garganta de um poro foi representada através de um capilar com uma constrição e a formação de emulsões foi estudada na base da quebra de gotas infinitas de óleo dispersas em uma fase contínua, quando escoam através de uma constrição.

A pesquisa incluiu, entre as fases iniciais, o projeto e montagem da bancada experimental utilizada neste trabalho.

A partir do estudo do estado da arte, e baseado nos parâmetros que são possíveis de serem quantificados ou controlados durante a exploração dos reservatórios de petróleo, diferentes condições de operação foram analisadas, buscando determinar as condições necessárias para a formação de emulsões. As dimensões dos capilares foram escolhidas de forma a representar aquelas correspondentes a um meio poroso de alta permeabilidade. A Fig.2.13 apresenta um exemplo das dimensões típicas de uma garganta de poro.

2.3.1

Materiais e caracterização

Foram escolhidos como fase dispersa óleos minerais de diferentes viscosidades, e n-heptano puro, para evitar inferências químicas de agentes aditivos, e para permitir uma ampla faixa de razões de viscosidades. Os óleos minerais, por serem transparentes, permitem fazer uma adequada visualização.

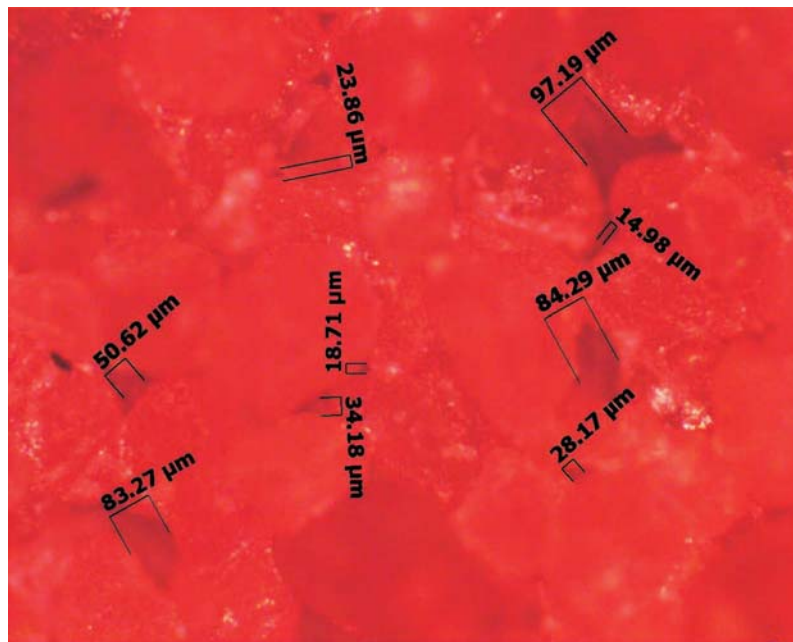


Figura 2.13: Dimensões de garganta de poro, a partir de uma fotografia num testemunho de rocha.

A fase molhante foi água desionizada (tratada por osmose reversa), misturada com surfactante ou glicerina pura. Como agente tensoativo, foi usado o surfactante SDS (dodecil sulfato de sódio), a uma concentração de 0.03 M (3 vezes a concentração miscelar crítica). O SDS possui um HLB (balanço hidrofílico-lipofílico, descrito na seção anterior) de 40. A nomenclatura SDS será usada neste texto para se referir a este surfactante, ou as soluções contendo este agente tensoativo.

O procedimento referente à determinação das propriedades dos materiais usados é detalhado a seguir.

Determinação das densidades dos fluidos. As densidades dos fluidos foram determinadas usando um picnômetro e uma balança de ± 0.0001 g de precisão. No caso do n-heptano, o valor da densidade foi tomado da folha de especificações técnicas do produto, já que a volatilidade não permite determinar tais propriedades com precisão, usando o método mencionado.

Por causa dos baixos valores do número de Bond [$O(10^{-6})$], as diferenças de densidade entre as fases dispersa e contínua não afetam os experimentos e não são levadas em conta nesta pesquisa [42].

Determinação das tensões interfaciais (TIF) entre os fluidos. As tensões interfaciais foram determinadas pelo método do anel, a uma

temperatura de $T = 25 \text{ }^\circ\text{C}$. O princípio do método é o seguinte: um anel é submerso na superfície líquida ou na interface. Depois, é acionado um sistema que eleva o anel até fazê-lo ultratrapassar a interface (líquido/ar ou líquido/líquido) medindo a força requerida para separar o anel da superfície.

Assumindo que a medida que o anel é puxado ele suporta um cilindro de líquido (veja Fig. 2.14, direita), a força total P requerida para separar o anel é igual à massa de líquido no cilindro:

$$P = Mg = 2\pi\sigma R^* + 2\pi\sigma(R^* + 2r) = 4\pi\sigma(R^* + r) = 4\pi\sigma R \quad (2-5)$$

sendo:

M massa de líquido suportada pelo anel,

R^* raio interno do anel,

σ tensão interfacial,

r raio ou espessura do cabo do anel,

$R^* + 2r$ raio externo do anel,

$(R^* + r) = R$ é o raio médio do anel .

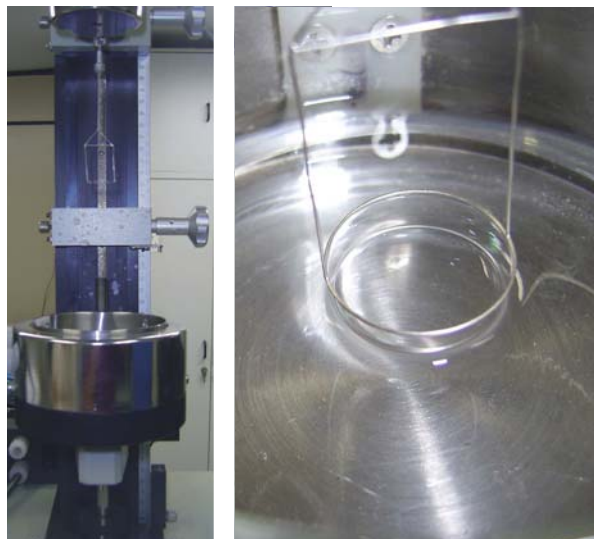


Figura 2.14: Tensiômetro de anel.

O tensiômetro usado conta com um banho termostático para o controle da temperatura de medição.

A Eq.(2-5) não é exata, pois a forma do líquido levantado pelo anel não é a de um cilindro. O tensiômetro do anel usa um fator de correção para o calculo exato da tensão superficial. Na obtenção dos resultados na determinação da tensão interfacial, foram usadas as correções do Laboratório de Caracterização de Fluidos da PUC-Rio.

Determinação das viscosidades dos fluidos. Foi usado um viscosímetro Cannon-Fenske. Os viscosímetros são aparelhos que fornecem a viscosidade cinemática $\nu = \frac{\mu}{\rho}$, sendo μ a viscosidade dinâmica e ρ a densidade do fluido. Em geral, determina-se o tempo t que um certo volume de líquido leva para escoar através de um tubo capilar (Viscosímetro Cannon-Fenske) ou um orifício (viscosímetro Saybolt Universal). Tendo em vista a grande variação da viscosidade com a temperatura, todos os viscosímetros ficam mergulhados em banhos termostáticos, neste trabalho a 25°C.

A viscosidade cinemática (ν) é determinada no viscosímetro Cannon-Fenske a partir da equação que descreve o escoamento de fluidos em tubos. A vazão volumétrica é inversamente proporcional à viscosidade.

$$Q = \frac{V}{t} = \frac{\pi D^4}{128\mu} \rho g \cos \theta \quad (2-6)$$

$$\nu = \frac{\mu}{\rho} = \frac{\pi D^4}{128V} g \cos \theta t = Ct \quad (2-7)$$

sendo:

V Velocidade do fluido no viscosímetro,

D diâmetro da seção onde escoo o fluido,

g gravidade,

θ ângulo de inclinação do viscosímetro.

A constante C do viscosímetro depende do diâmetro do tubo capilar, da inclinação do tubo capilar e do volume V escoado durante o intervalo de tempo medido. A dimensão da constante é L^2/t^2 .

A Fig. 2.15 mostra o equipamento usado, composto por um viscosímetro, submerso num banho térmico e uma bomba de vácuo para levar o fluido até posição desejada no viscosímetro.

Foram usadas correções nos valores de densidades, viscosidades e tensão interfacial, segundo as metodologias estabelecidas no Laboratório de



Figura 2.15: Viscosímetro Cannon-Fenske.

Componente	Densidade (g/ml)	Viscosidade (mP.s)
Água destilada	0.998	1
Glicerina	1.261	1011
n-heptano	0.7	0.4
Óleo Mineral OP3	0.7876	3.5
Óleo Mineral OP10	0.8361	13.36
Óleo Mineral OP35	0.8834	57
Talpa 30	0.903	460

Tabela 2.3: Propriedades dos líquidos utilizados nos testes em capilares.

Caracterização de Fluidos (Departamento de Engenharia Mecânica, PUC-Rio).

As densidades e viscosidades dos fluidos usados na execução desta fase dos experimentos são apresentadas na Tab. 2.3. As propriedades dos sistemas óleo-água estudados são listadas na Tab.2.4. Os experimentos foram efetuados para oito sistemas diferentes, com diferentes tensões interfaciais, e para sete razões de viscosidade.

2.3.2 Procedimento experimental

A geometria da garganta de um poro dentro de um meio poroso foi simulada por um capilar de borosilicato com uma garganta. Foram utilizadas três geometrias diferentes, consistindo em diferentes razões de diâmetro constricção/seção reta (fabricante: Hilgenberg). A curvatura transversal na constricção, $1/R_3$, foi também diferente para cada capilar. As geometrias usadas são mostradas na Fig.2.16, e descritas, conjuntamente com as condições de escoamento analisadas, na Tab.2.5. Neste documento, a combinação das nomenclaturas das Tabs. 2.4 e 2.5 indicam através de qual geometria está

Sistema	Componentes (fase não molhante/fase molhante)	Raz. de viscosidades ($\kappa = \frac{\mu_{nw}}{\mu_w}$)	TIF (mN/m)
I	n-heptano/água+glicerina 55%	0.056	21.7
II	n-heptano/água+glicerina 40%	0.124	25.5
III	n-heptano/SDS	0.4	17.2
IV	OP3/SDS	3.5	9.8
V	OP10/SDS	13.36	6.7
VI	OP35/SDS	57	6.7
VII	Talpa 30/SDS	460	5.3
VIII	Talpa 30/água	460	17.9

Tabela 2.4: Propriedades dos líquidos usados nos experimentos (@ 25°C).

escoando o sistema em questão. A nomenclatura IVb, por exemplo, indica que o sistema IV escoar pelo capilar *b*.

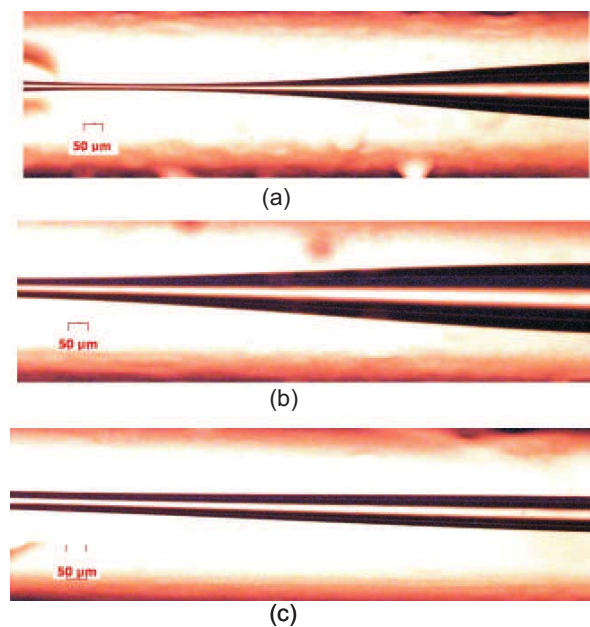


Figura 2.16: Capilares constritos usados no estudo. (a) 20/200 (razão de diâmetro constrição/seção reta); (b) 50/200 e (c) 50/100.

Preparação das emulsões a serem injetadas. Antes de preparar as emulsões, os fluidos apresentados na Tab.2.3 foram filtrados usando uma membrana, para evitar o bloqueio por causa de partículas presentes nos líquidos.

Os sistemas apresentados na Tab.2.4 foram misturados numa concentração fixa de óleo (30%). As emulsões de gotas grandes foram obtidas botando as fases num frasco, e com uma leve agitação manual. As emulsões assim produzidas não são muitos estáveis no tempo

Geometria	$\frac{2R_c}{2R_T}$ (em μm)	$\frac{1}{R_3}$ (em μm^{-1})	Velocidade (na seção reta, (m/s))	Ca (na seção reta)
a	20/200	0.09972	8.84×10^{-5} - 5.31×10^{-4}	9.02×10^{-6} - 5.41×10^{-5}
b	50/200	0.039182	8.84×10^{-5} - 1.77×10^{-3}	4.05×10^{-6} - 5.75×10^{-4}
c	50/100	0.03924	3.54×10^{-4} - 2.12×10^{-3}	3.61×10^{-5} - 4×10^{-4}

Tabela 2.5: Velocidades e números de capilaridade estudados.

podendo acontecer coalescência de gotas, principalmente das maiores, mas a estabilidade é suficiente para permitir a realização dos testes aqui descritos.

Injeção das emulsões nos capilares e visualização. A análise experimental do deslocamento de uma gota através de um capilar com constrição foi desenvolvida no dispositivo experimental esquematizado na Fig.2.17. Uma fotografia da bancada de visualização é apresentada na Fig.2.18.

O dispositivo de injeção inclui uma seringa de vidro acoplada a uma bomba-seringa, o que permite o controle do fluxo através do capilar. O capilar com garganta é montado a jusante da bomba sobre um microscópio invertido.

Os efeitos visuais indesejáveis associados às curvaturas dos capilares foram mitigados submergindo os capilares em glicerina. A Fig. 2.19 mostra o detalhe de um capilar, colocado sobre a mesa do microscópio, e submerso numa pequena piscina de glicerina, para a visualização da passagem das gotas através dos capilares.

As imagens foram capturadas usando uma câmera CCD acoplada a um microscópio invertido, modelo Axiovert 40 MAT (Carl Zeiss), operando com luz transmitida. Foi adquirido este tipo de microscópio por possuir uma grande área para a realização da montagem, o que permite uma maior área de trabalho e uma melhor manipulação dos capilares. A velocidade de captura foi de 15 quadros por segundo. Foram usadas objetivas de 2.5x, 5x e 10x para observar a região da constrição. A objetiva de 10x foi usada para capturar os detalhes do “snap-off”, enquanto que as objetivas de 2.5 e 5x foram usadas para capturar campos maiores da constrição. A câmera foi conectada ao computador, e deste as imagens foram enviadas a um equipamento VHS (para capturar vídeos de longa duração dos escoamentos através dos capilares). No computador foram capturados vídeos de curta duração e imagens pontuais.

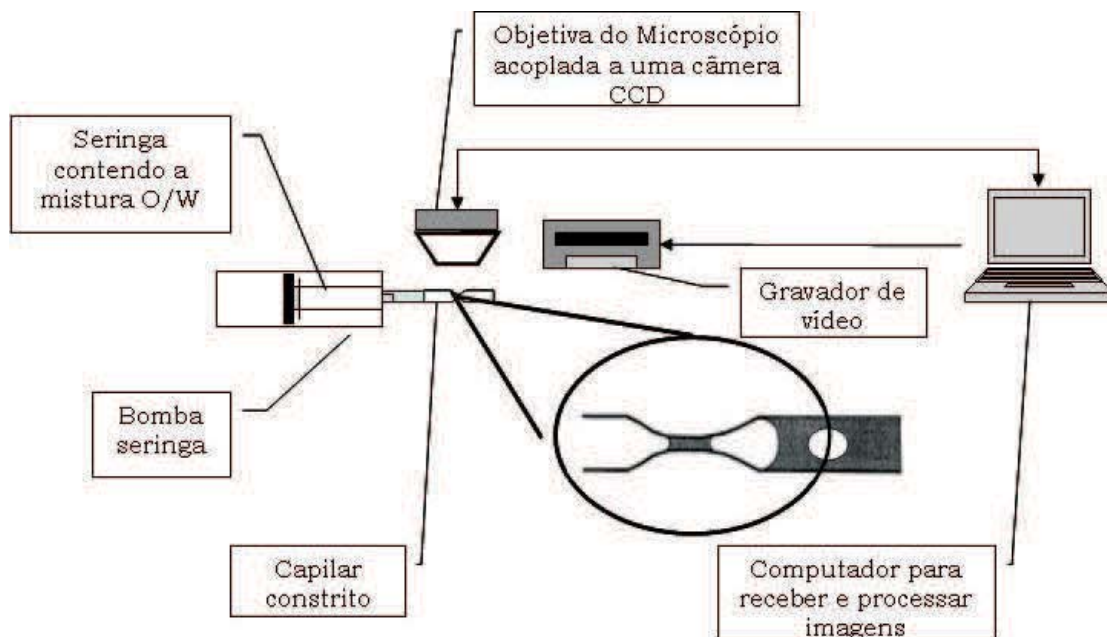


Figura 2.17: Diagrama esquemático do dispositivo experimental para as provas em capilar com constrição.

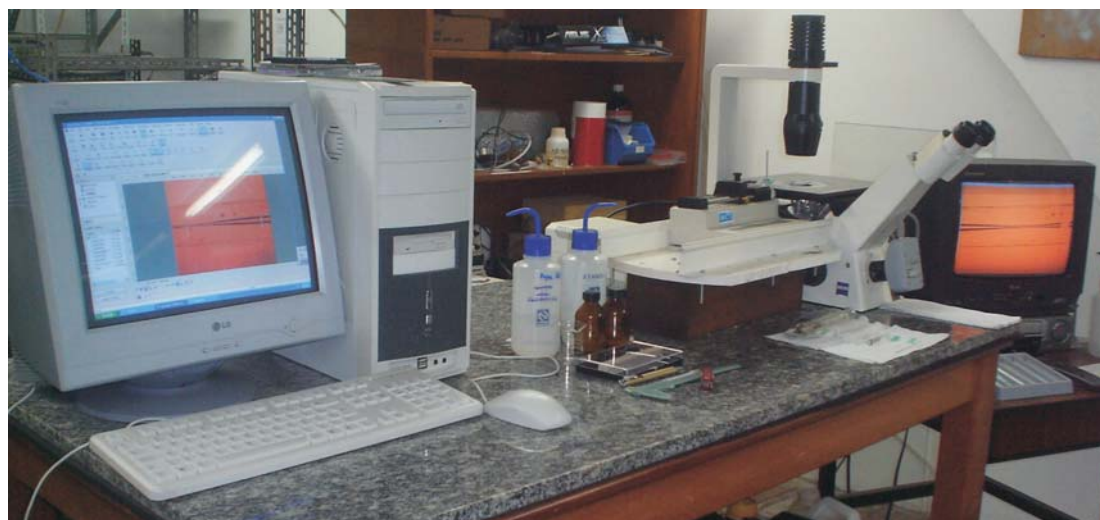


Figura 2.18: Dispositivo experimental para as provas em capilar com constrição.

O procedimento experimental pode ser resumido nos seguintes passos:

i) *Carregamento da seringa com emulsão.* Por causa da diferença de densidade, as emulsões separam, com o passar do tempo, numa camada de gotas de óleo e de fase contínua. Então, da camada superior, são escolhidas gotas grandes para serem injetadas.

ii) *Conexão do capilar à seringa.* Isto foi conseguido empregando uma conexão especial, de material plástico, de uso cirúrgico. O capilar é

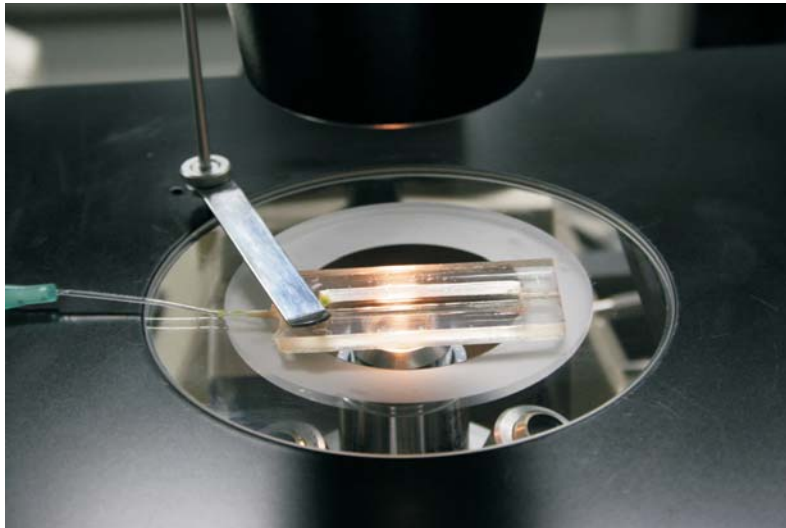


Figura 2.19: Detalhe do dispositivo experimental para as provas em capilar com constrição.

inserido dentro do conector, e este é acoplado à seringa. Antes de adaptar o conector à seringa, esta deve ser colocada na posição vertical para conseguir a saída de qualquer bolha de ar. Deve-se assegurar a ausência de vazamento nas conexões, já que vazamentos mínimos representam grandes erros nos experimentos.

iii) *Purga de ar*. Após efetuadas todas as conexões, é preciso purgar qualquer resto de ar presente na seringa, conector e capilar, mantendo esta na posição vertical, e pulsando o êmbolo da seringa. Esta etapa pode determinar o sucesso ou não da prova.

iv) *Montagem do sistema de injeção*. A seringa é colocada na bomba, e fixada com os dispositivos correspondentes. O capilar é colocada numa pequena piscina, posicionada embaixo da objetiva do microscópio, selando-se as regiões onde pudesse acontecer vazamento de glicerina, e então a pequena piscina é enchida com glicerina.

v) *Ajuste do dispositivo de visualização*. É escolhida a lente a ser usada, e focalizada a região a ser estudada, geralmente a constrição do capilar. São ajustadas a iluminação e o tempo de exposição da câmara, sendo este função da velocidade do escoamento a ser estudado, para capturar adequadamente os fenômenos que acontecem na interface das gotas na passagem pelo capilar. A intensidade da lâmpada do microscópio é ajustada segundo os fluidos a serem usados, com o intuito de fazer o contraste entre as fases o maior possível, para uma melhor visualização.

vi) *Escolha das vazões de injeção.* A vazão é ajustada na bomba, existindo um valor mínimo e máximo possível para cada diâmetro de seringa. Logo após é iniciada a injeção.

vii) *Estabilização do sistema.* Após 20 minutos, poderia considera-se que o sistema está estabilizado, em concordância com os trabalhos de Rodd e Cobos [43, 44], e inicia-se a visualização e estudo do escoamento da gota através do capilar.

viii) *Captura de imagens.* A câmara CCD é conectada em paralelo com um aparelho VHS (para vídeo de longa duração, cobrindo a experiência toda) e com o computador, para a captura de imagens pontuais ou vídeos de curta duração.

ix) *Monitoramento permanente.* O sistema é monitorado continuamente, com a finalidade de detectar qualquer fator afetando negativamente o experimento, como vazamento, presença de ar, ou impurezas obstruindo a constrição.

x) *Limpeza dos capilares.* No caso de entupimento dos capilares na constrição, o sistema deve de ser desmontado, e fase contínua é injetada pelo extremo da saída do capilar, até fazer a impureza sair do capilar. Logo depois, os passos (i) ao (ix) devem ser repetidos.

Processamento de imagens. As imagens foram analisadas usando o software Axiovision (Carl Zeiss) para medir detalhes dos experimentos, tais como tamanhos de gotas, distâncias e diâmetros na constrição. Quando necessário, os vídeos foram convertidos ao formato digital usando um aparelho conversor, Convert X, PX-AV 100U, conjuntamente com o aplicativo Intervideo WinDVD Creator.

2.4 Resultados

Enquanto as gotas escoam através da seção reta do capilar, um fino filme de água (fase molhante) escoam adjacente à parede do capilar. Quando a gota escoam através da constrição do capilar, é gerada uma diferença de pressão capilar, conforme indicado na Eq.(2-3). Esta diferença de pressão conduz água na direção da garganta do capilar, criando um colar que cresce até fechar, resultando na quebra da gota de óleo. Para o problema de estudo de quebra de gotas durante a passagem através de uma garganta, a diferença de pressão capilar pode ser estimada pela Eq.(2-3), assumindo que R_1 é

aproximado por R_T , o raio da seção reta do capilar, e que o raio R_2 é inicialmente (antes de se iniciar o “snap-off”) aproximado por R_c , o raio da constricção. Tais aproximações são válidas nos experimentos realizados, dado que a espessura do filme de fase molhante na parede do capilar é desprezível, pelo menos antes de se iniciar o “snap-off”. Também é suposto que a pressão da gota nas regiões indicadas com os pontos 1 e 2 é constante. Conforme é iniciada a acumulação de fase molhante na constricção, o raio R_2 diminui, i.e. a diferença de pressão capilar descrita pela Eq.(2-3) aumenta, favorecendo a quebra de gota pelo mecanismo “snap-off”.

A Fig.2.20 apresenta uma seqüência de imagens que ilustra o crescimento do colar da fase molhante até a quebra da gota da fase não-molhante. Esses resultados foram obtidos com o capilar b (50/200) e para o sistema IV. A gota de óleo se movimenta de esquerda a direita em cada imagem. O estado inicial da formação da estrutura tipo colar é mostrada na Fig.2.20(a). O crescimento do colar e o processo de “afloramento” da gota de óleo é mostrada claramente nas Figs.2.20(b) e (c). Na última fotografia, a gota de óleo quebra em duas gotas.

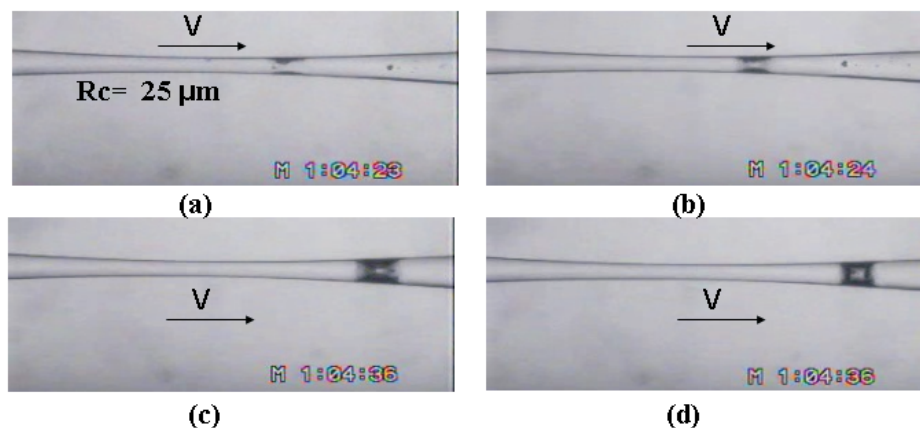


Figura 2.20: “Snap-off” típico de do escoamento de uma gota de óleo através de um capilar com garganta. Sistema IVb. $\kappa = 3.5$.

O mecanismo observado e descrito na Fig.2.20 concorda com as afirmações de Roof, que afirma que para o “snap-off” acontecer, a frente da gota deve sobressair da constricção até uma certa distância [29].

A vazão de água (fase molhante) na direção da garganta é uma função da diferença de pressão capilar, que causa o escoamento, da viscosidade da fase molhante, que resiste ao escoamento, e da tensão de cisalhamento na interface, proporcional à viscosidade da fase não-molhante, que leva o escoamento de água para longe da constricção. Se o escoamento resultante

da fase molhante é na direção da garganta do capilar, uma gota infinita pode quebrar. Então, a ocorrência de quebra de gota pode ser “mapeada” como uma função do número de capilaridade, da razão de viscosidade e da geometria do capilar.

Para cada um dos três capilares estudados, e para cada um dos oito sistemas testados, a vazão foi suavemente incrementada. O escoamento de gotas grandes através da constrição foi observada para cada vazão, i.e., número de capilaridade. A ocorrência ou não de quebras de gotas foi observada. Estes resultados para geometria b ($2R_c/2R_T = 50/200$) são mostrados na Fig.2.21. Os símbolos abertos no gráfico representam as condições experimentais nas quais não foi observada quebra de gota. O símbolos cheios indicam as condições nas quais o “snap-off acontece. No caso da mais baixa razão de viscosidade testada, i.e, $\kappa = \frac{\mu_{nw}}{\mu_w} = 0.056$, a quebra de gota foi sempre observada, mesmo nos valores de número de capilaridade mais altos. Neste caso, a viscosidade da gota é mais baixa do que a da fase continua e a tensão de cisalhamento na interface que leva a água para longe da garganta do capilar é pequena. Esta observação concorda com a conclusão de Rossen [25], que afirma que uma bolha de gás, i.e $\kappa \rightarrow 0$ sempre quebra ao escoar através de um capilar constrito. Neste caso, pode então se dizer que o comportamento de uma gota de tão baixa viscosidade se assemelha ao de uma bolha. As observações são as seguintes:

1. Conforme a razão de viscosidade cresce, existe um número da capilaridade por acima do qual a gota escoar através da constrição sem quebrar. Este valor crítico de número de capilaridade cai conforme a razão de viscosidade aumenta. A tensão de cisalhamento na interface cresce com o incremento da viscosidade da fase não molhante, puxando a fase molhante para longe da constrição. Conseqüentemente, a magnitude relativa da força capilar que leva água na direção da garganta deve ser maior, i.e. o número de capilaridade necessário para romper as gotas cai.
2. Para os mais altos valores de razão de viscosidade, i.e. $\kappa > 57$, a quebra de gotas não foi observada, na faixa de números de capilaridade estudada. Esta observação concorda com as reportadas por Olbricht [27] e Tsai et.al. [45], e mais recentemente por Janssen [2], que estabeleceram que o “snap-off” só acontece para gotas de baixa viscosidade, i.e. para baixas razões de viscosidade. Janssen [2] observou quebra de gotas num sistema com $\kappa=126$, porém para condições de número de

capilaridade elevados, fora da faixa explorada neste trabalho. Neste caso, a quebra de gota não foi através no mecanismo de “snap-off”.

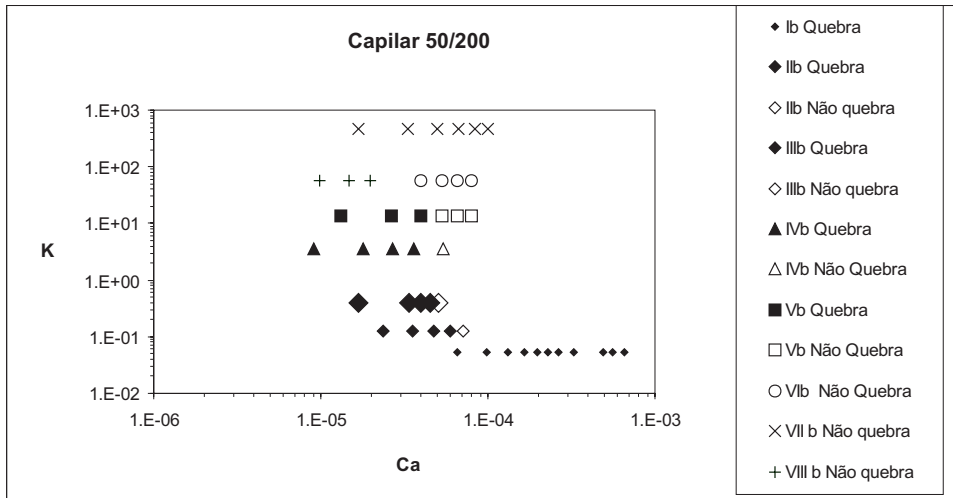


Figura 2.21: Regiões Mapeadas par ao “snap-off”. Razão de viscosidades vs Ca. Capilar b ($2R_c/2R_T = 50/200$); sistemas I-VIII.

3. A quebra de gota foi observada apenas dentro de uma faixa de números de capilaridade, para cada razão de viscosidade e geometria do capilar. Isto concorda com os resultados obtidos por B. Sendrea [46], que estudou a quebra de gotas pelo mecanismo “snap-off” para vários sistemas óleo/água. O número de capilaridade crítico para a quebra de gotas num capilar é também uma função da geometria do capilar, conforme esperado. Quanto maior a contração, maior a diferença de pressão capilar, e, conseqüentemente, maior a força que conduz ao mecanismo “snap-off”. A Fig.2.22 apresenta os resultados para as outras duas geometrias testadas ((a), 1/10, e (c), 5/10) na faixa de razões de viscosidade de 3.5 a 460. O capilar (a) possui uma razão de contração mais forte e o capilar (c), uma razão de contração mais fraca que o capilar (b). Para maior razão de viscosidade, $\kappa=460$, a quebra de gota não foi observada em toda faixa de número de capilaridade explorada para os dois capilares.
4. Para razão de viscosidade $\kappa=57$, a quebra de gota não ocorreu com a geometria (c) para toda a faixa de número de capilaridade testada. Devido ao maior diâmetro do capilar (a) (em relação á geometria (c)), a faixa de número de capilaridade explorada foi mais baixa. Com a geometria (a) a quebra de gotas foi observada para $Ca \leq 2.5 \times 10^{-5}$. É importante observar que com a geometria (b), que possui uma razão

de raios maior e conseqüentemente uma diferença de pressão capilar menor, a quebra de gotas não foi observada até $Ca \approx 10^{-5}$.

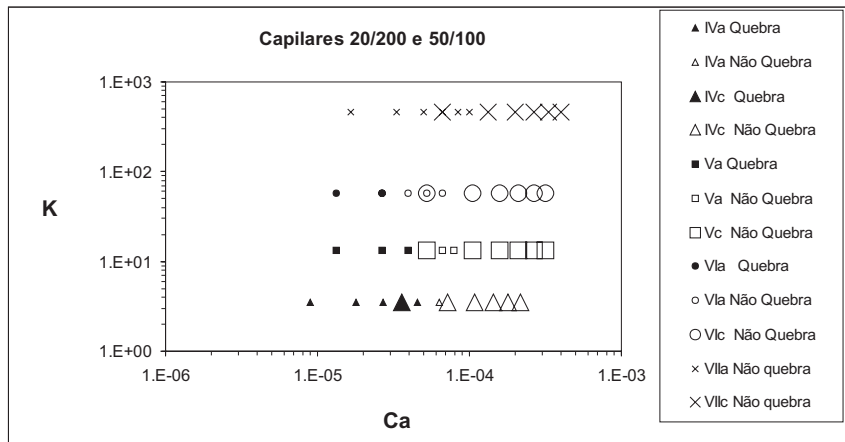


Figura 2.22: Regiões Mapeadas par ao “snap-off”. Razão de viscosidades vs Ca. Capilares *a* ($2R_c/2R_T = 20/200$) e *c* ($2R_c/2R_T = 50/100$); sistemas IV, V, VI e VII.

5. Como a faixa de número de capilaridade explorada com a geometria (c) foi mas alta e como a diferença de pressão capilar é mais fraca, devido a maior razão de raios (50/100), a quebra de gotas só foi observada para razão de viscosidades $\kappa=3.5$. Já com a geometria (a), a quebra de gotas foi observada para $3.5 < \kappa < 57$.

Os resultados apresentados nas Figs.2.21 e 2.22 mostram que o número de capilaridade crítico no qual a quebra de gotas ocorre é uma função da geometria do capilar. Para cada geometria, e para um mesmo sistema, um novo valor de numero de capilaridade crítico deve ser determinado. Seria importante a determinação de um único gráfico que mostre as condições de quebra de gotas levando em conta a geometria do capilar. Isto é feito mediante a análise das magnitude relativa das forças importantes. Todos os dados experimentais apresentados nas Figs. 2.21 e 2.22 podem ser escritos em termos de duas vaiáveis adimensionais:(i) o número de capilaridade $Ca = \mu_w V/\sigma$ que representa a a razão entre as forças viscosas resistivas e as capilares, e (ii) $\Delta P^* = [\frac{1}{R_2} - \frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_3}]/[\frac{1}{R_1} \frac{\mu_{nw}}{\mu_w}]$ que determina a razão entre a diferença de pressão capilar e a tensão de cisalhamento na interface, que é proporcional à viscosidade da gota. A primeira força contribui para a quebra de gota enquanto a segunda resiste ao escoamento que leva ao “snap-off”. Todos as condições experimentais testadas são representadas em termos de Ca e ΔP^* na Fig.2.23.

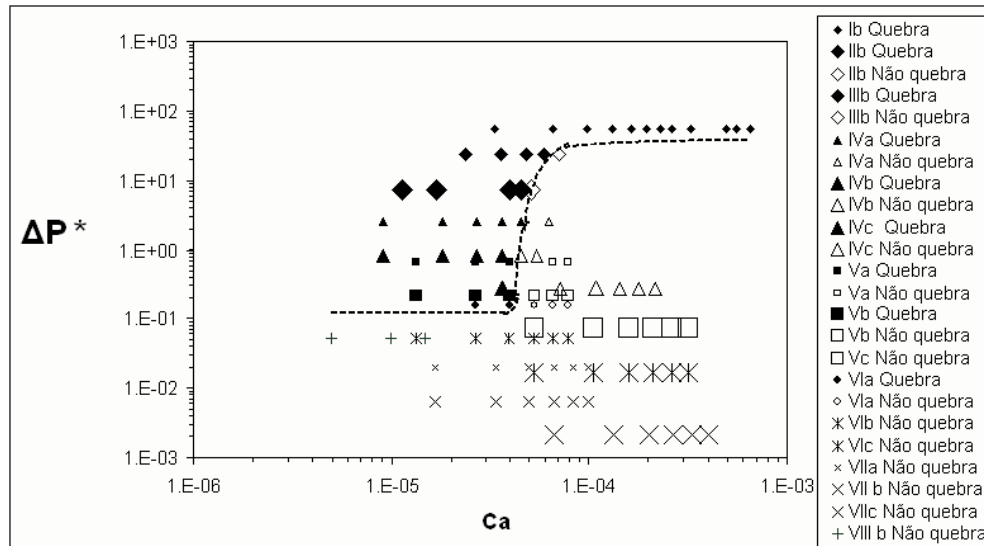


Figura 2.23: Regiões mapeadas para o “snap-off”. Diferença de pressão capilar adimensionalizada vs Ca .

A região do gráfico na qual o “snap-off” ocorre para as três diferentes geometrias estudadas colapsa numa única região.

Se apresentaram três comportamentos diferentes em relação ao o valor de ΔP^* requerido para a quebra acontecer, para diferentes números de capilaridade analisados:

1. Comportamento “viscoso”: Os sistemas que apresentam $\Delta P^* < 10^{-1}$ não apresentaram quebra de gotas.
2. Comportamento “tipo bolha”: Para $\Delta P^* \approx 60$, a quebra de gota aconteceu em toda a faixa de Ca testada, como se tratasse de bolhas.
3. Comportamento “de transição”: Entre os limites mencionados acima, o valor de ΔP^* requerido para o “snap-off” acontecer aumenta rapidamente de 10^{-1} a 60, e foi observada dependência com o número de capilaridade. Este comportamento pode ser descrito como uma transição de comportamento “viscoso” ou “tipo gota” para “tipo bolha”, e será analisado no parágrafo que segue.

Janssen [2], nos seus experimentos de escoamentos bifásicos através de microcanais interconectados, encontrou que para um mesmo sistema, com os mesmos fluidos e geometrias, se apresentam diferentes regimes de escoamento, para cada faixa de número de capilaridade. O regime de escoamento com número de capilaridade observado entre 10^{-5} e 10^{-4} (chamado por ele de “escoamento dominado por capilaridade”) é diferente

daquele observado entre 5×10^{-4} e 10^{-3} . No primeiro, segundo Janssen, grandes gânglios escoam interconectados, através dos poros com menor resistência capilar, e no segundo, a fase de óleo está completamente dispersa na água. Na faixa de números de capilaridade entre $10^{-4} < Ca < 5 \times 10^{-4}$, Janssen define uma região de “regime de escoamento de transição”, onde uma combinação dos regimes mencionados acontece.

No caso deste estudo, e baseado nos resultados apresentados na Fig.2.23, pode-se dizer também que existe uma região de transição na faixa de $0.1 < \Delta P^* < 80$. Para valores baixos de ΔP^* , a resistência ao escoamento da fase molhante em direção à garganta é tão alta que a quebra de gotas nunca ocorre. Já para altos valores de ΔP^* , a força responsável pelo escoamento da fase molhante é bem mais forte que a resistência ao escoamento e desta forma a quebra de gotas ocorre a qualquer valor do número de capilaridade. Dentro da faixa de transição, a quebra ou não da gota depende do número de capilaridade.

Uma outra comparação pertinente aos escoamentos a altos valores de ΔP^* tem a ver com o critério proposto por Roof [29] e descrito Rossen [25] para geração de espumas (razões de viscosidade infinitamente baixas). Segundo este critério, para o “snap-off” acontecer é necessário que a pressão capilar na entrada da constricção (P_{c_e}) seja menor que a pressão capilar requerida para o “snap-off” ($P_{c_{sn}}$). P_{c_e} é calculado conforme a Eq.(2-2), e $P_{c_{sn}} = P_{c_e}/2$. A Tab.2.6 apresenta os valores de $P_{c_{sn}}$ e P_{c_e} assim calculados, e os correspondentes a P_{c_c} , a pressão capilar na constricção ($P_{c_c} = \sigma(\frac{1}{R_c} - \frac{1}{R_3})$) e a ΔP , calculado conforme a Eq.(2-3). Para fins comparativos, são colocados na tabela os valores correspondentes à diferença de pressão adimensionalizada, ΔP^* , e indica-se se aconteceu quebra pelo mecanismo “snap-off”, para pelo menos uma das vazões estudadas.

Como pode ser observado a partir da tabela, até o sistema Vb, a geração de emulsão pode ser comparada com a geração de espumas, se seguindo o critério de Rossen, mesmo que a quebra só acontece para algumas vazões. A partir do sistema Vc, isto deixa de acontecer. As gotas não quebram mais, mesmo tendo valores de $P_{c_c} < P_{c_{sn}}$, e relativamente altos valores de gradientes de pressão capilar. A partir do sistema Vc, o fator que determina a ausência de quebra pelo mecanismo “snap-off” é o valor de ΔP^* , que inclui o fatores de geometria, gradientes de pressão capilar, e adicionalmente a κ .

Pode então ser inferido que em presença de um sistema óleo-água com uma alta razão de viscosidade, é possível fazer a gota quebrar, caso a diferença de pressão capilar for suficientemente alto (uma forte contração).

Sistema	ΔP (N/m^2)	ΔP^*	P_{c_c} (N/m^2)	P_{c_e} (N/m^2)	$P_{c_{sn}}$ (N/m^2)	Observações
Ib	633.25	54.7	850.25	1736	868	Quebra
IIb	744.14	23.5	999.14	2040	1020	Quebra
IIIb	501.93	7.3	673.93	1376	688	Quebra
IVa	742.05	2.56	977.25	1960	980	Quebra
IVb	285.98	0.834	383.98	784	392	Quebra
IVc	188.549	0.275	384.54	784	392	Quebra
Va	601.12	0.677	668.12	1340	670	Quebra
Vb	195.52	0.22	262.52	536	268	Quebra
Vc	128.90	0.0725	262.90	536	268	Não quebra
VIa	601.12	0.157	668.12	1340	670	Não quebra
VIb	195.52	0.0512	262.52	536	268	Não quebra
VIc	128.90	0.0169	262.90	536	268	Não quebra
VIIa	475.51	0.0195	528.51	1060	530	Não quebra
VIIb	154.66	0.00634	207.66	424	212	Não quebra
VIIc	101.97	0.00209	207.97	424	212	Não quebra
VIIIb	522.36	0.00512	701.36	1432	716	Não quebra

Tabela 2.6: Comparação de um comportamento “tipo gota” (médios e altos valores de κ) a um segundo “tipo bolha” (baixos κ), segundo o incremento na razão de viscosidade e diminuição dos valores de ΔP^* .

Os autores que associam a ruptura mediante o mecanismo “snap-off para gotas de baixas viscosidade, dada uma determinada geometria, estão na realidade falando de uma baixa razão de viscosidade para uma determinada diferença de pressão capilar (razão de diâmetros) dada, que em termos de pressão capilar adimensional e Ca poderia resultar em uma região de não quebra na Fig.2.23.

Acidentalmente, durante alguns dos experimentos, o tubo capilar foi entupido por algumas partículas, criando um bloqueio irregular e muito abrupto. Isto permitiu uma análise de quebra de gotas no escoamento através de constrições muito pequenas. O tamanho real da constrição causada pela obstrução acidental não pode ser medido. A Fig. 2.24 mostra a seqüência de imagens de quebra de gotas. São formadas pequenas gotas, com uma estreita distribuição de tamanho de gotas, com diâmetros entre 8 e 30 microns. Um interessante fenômeno foi observado. Enquanto as gotas quebram em outras menores, o volume da gota a montante diminui, e o tamanho das gotas produzidas, à jusante da constrição, aumenta, até um ponto no qual a gota original a montante é tão pequena que o fenômeno de quebra de gota não acontece. Após este ponto, a gota simplesmente passa pela constrição sem quebrar. Assim foram geradas gotas com dimensões muito pequenas, o que demonstra que gotas de tais dimensões podem

ser geradas no meio poroso, bem antes dos fluidos de reservatório serem expostos aos escoamentos turbulentos no fundo de poço, ou nas instalações de superfície. Conforme citado antes, estes tamanhos de gota originam dificuldades nos processos de separação.

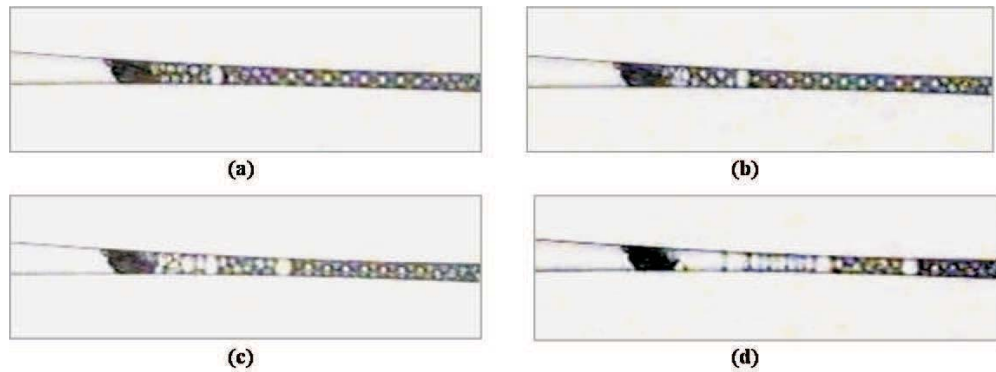


Figura 2.24: “Snap-off” através de uma constrição abrupta. $Q=0.02$ ml/h. Sistema IVb. Os diâmetros médios das gotas produzidas (d_p) são: (a) $d_p=11.57 \mu\text{m}$; (b) $d_p=13.33 \mu\text{m}$; (c) $d_p=20 \mu\text{m}$ e (d) $d_p=32 \mu\text{m}$.

Os raios das gotas geradas neste estudo foram maiores do que o raio da constrição para as geometrias estudadas, pois a contração no diâmetro do capilar é bastante suave, o que apresenta concordância com a definição de Ratlowski e Chang [28], de “snap-off” por drenagem.

Foram tomados os tempos para a quebra da gota, t_q , como sendo o tempo entre a passagem da frente da gota pela parte mais estreita da constrição, até o estágio final da quebra (separação em duas gotas). Os tempos de quebra forma adimensionalizados como $t_q^* = t_q/(\mu_w/\Delta P)$. Os resultados obtidos para a geometria *b* são apresentados na Fig.2.25. Os resultados, pelo menos qualitativamente, apresentam similaridade com aqueles obtidos por Gaultitz e col. [42, 38], num estudo de quebra de bolhas, para diferentes fases externas. Eles determinaram que o tempo adimensional para a quebra de uma bolha é proporcional a Ca^{-2} .

Como pode ser observado na Fig.2.25, existem três regimes distintos: para baixos valores de capilaridade, e.g. $Ca < 10^{-5}$, o tempo de quebra varia com a razão de viscosidade. O tempo aumenta com a razão de viscosidade. Para $3 \times 10^{-5} < Ca < 2 \times 10^{-4}$, o tempo de quebra adimensional obtido com os diferentes sistemas (diferentes razões e viscosidades) colapsam em uma única curva. Como na análise com bolhas, o tempo de quebra decresce com o número de capilaridade seguindo a relação $Ca^{-1.9}$.

Os tempos entre cada quebra, após a primeira quebra, não foram constantes. Isto pode ser atribuído as flutuações nos valores de diferença de

pressão capilar, por mudanças na configurações dentro do capilar, interações com as gotas previamente produzidas, entre outras.

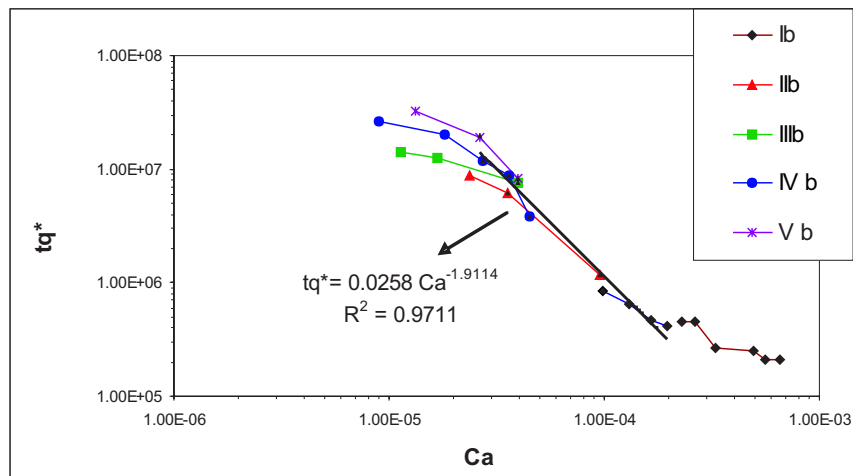


Figura 2.25: Tempo de quebra adimensionalizado, tq^* , vs Ca .

2.5 Comentários Finais

Foi desenvolvida, através de uma análise experimental, a pesquisa de quebra de gotas no escoamento de fluidos imiscíveis através de um capilar com garganta. Foi construída uma bancada experimental e desenvolvida uma metodologia para o estudo do fenômeno. Ainda quando alguns autores consideram que os experimentos em tubos capilares não são representativos de escoamentos em meios porosos, já que poderia favorecer o “snap-off”, a compreensão deste fenômeno nesta forma simplificada é essencial para estudos mais avançados na escala de testemunhos de rocha, e mais ainda, de reservatórios inteiros.

Foi obtido o mapeamento numa única curva das condições que levam à quebra de gota, sendo os parâmetros requeridos em tal análise de simples e prática obtenção. Esta curva mestre permite prever a geração de emulsões no escoamento bifásico através de um capilar com garganta. Os resultados são uma contribuição na compreensão do fenômeno de emulsificação dentro do meio poroso, com aplicações também no desenvolvimento de tecnologias de microfluidos.

Foram encontradas, e na sua maioria resolvidas, algumas dificuldades experimentais, tais como a presença de pequenas bolhas de ar, e freqüente entupimento dos capilares, particularmente aqueles com o menor diâmetro

na constrição (capilar a). A filtragem das fases, se bem que reduziu muito o problema, não o eliminou por completo, já que mesmo no ar existem partículas capazes de entupir o capilar. Por causa das pequenas dimensões, e por ser uma linha nova de pesquisa no departamento, achar as conexões e pequenos acessórios para tal escala representou um outro desafio, igualmente o controle dos vazamentos e da entrada do ar no sistema. Tais dificuldades experimentais foram resolvidas com sucesso.