A Federico Ludden y Jorge Bonafini, dos de los muchos físicos detenidos desaparecidos por intentar construir un mundo mas justo.

En ellos, a los 30000 y a todos los que siguen intentándolo.

Universidad Nacional de La Plata Facultad de Ciencias Exactas

# DESPLAZAMIENTO DE FLUIDOS INMISCIBLES

Tesis de Doctorado

Adriana L.Calvo

Directora: Dra. Marta Rosen Asesor Académico: Dr.Huner Fanchiotti

# INDICE

# A. - DESPLAZAMIENTO DE FLUIDOS INMISCIBLES EN MEDIOS POROSOS

I	INTRODUCCION			1
		fi u s		
II	DEFINICIONES			
	1 Medios Porosos	1 <sup>55</sup>		З
	2 Porosidad - Saturacion			4
	3 Permeabilidad			4
	4 Mojabilidad			6
	5 Parametros Caracteristicos			8
III	TECNICA EXPERIMENTAL		6	
	1 Preparación de los Medios Porc	)505		11
	2 Saturación de los Lechos - Det	erminacion (	de	
	la Porosidad			13
	3 Determinación de la permeabili	dad		14
	4.— Fluidos y Trazadores			15
	5 Descripción del Equipo y la Té	cnica Experin	nental	
	5.1.— Equipo Experimental			17
	5.2 Técnica Experimental			19
IV	DESPLAZAMIENTOS MISCIBLES			
	1 Elementos Teoricos			21
e <sup>16</sup>	2 Resultados Experimentales			25
v	DESPLAZAMIENTOS INMISCIBLES			
	1 Elementos Teoricos - Anteceden	tes		29
	1.1 Generalizacion de la Ley	de Darcy		30
	1.2 Presion Capilar	15 -		31
	1.3 Permeabilidad Relativa			33
	1.4 Perfiles de Saturacion			35
	2 Descripcion de las Experiencia	s y Resultado	s	40
	2.1 Lechos Saturados con el	Fluido No Mo	jante	41
	2.1.1 Ciclos de Inyecc	ion		41

		2.1.2 Resul	tados Experim	entales	43
	2.2	Lechos Satura	dos con el Fl	uido Mojante	55
		2.2.1 Cicle	os de Inyeccio	n	56
		2.2.2 Resul	tados Experim	entales	57
	3 Discu	sión de los Re	sultados	\$1	60
	3.1	Caudales			60
	3.2	Perfiles de S	Saturación		62
	3.3	Efecto del Or	den de las Sa	turaciones	65
	3.4	Movimiento de	el <mark>Ag</mark> ua Residu	al	67
	3.5	Irrupcion del	Fluido Despl	azante	68
				*	
VI	CONCLUSIO	NES		- 5 	71
	ANEXO I			8	73
	ANEXO II			9 °	77
	REFERENCI	AS			81

# B. - DESPLAZAMIENTO DE FLUIDOS INMISCIBLES EN MODELOS CAPILARES

I	INTRODUCCION	89
		9
II	DEFINICIONES	
	1 Sistemas con Dos Fases	91
	1.1 Ley de Laplace	92
	2 Sistemas con Tres Fases	92
	2.1 Relación de Young	94
	2.2 Tubos Capilares	96
	2.3 Dinamica de la Interfase en Tubos	
	Capilares Horizontales	98
	2.4 Sistemas de Capilares Interconectados	104
	3 Parametros Característicos	107
III. <b>-</b>	ANTECEDENTES TEORICOS Y EXPERIMENTALES	
	1 Revision de los Frincipales Resultados	
	Experimentales Previos	111
	2 Descripción de los Desarrollos Teoricos	
	Previos	118

	IV	DISPOSITIVO EXPERIMENTAL	
		1 Descripción	125
8 8 8		2 Tubos Capilares	126
		2.1 Mojabilidad	126
		2.2 Diametro y Superficie Interior	127
		3 Cubetas	129
		4 Nivelación del Sistema	131
		5 Determinación de la Presión de Trabajo	131
		6 Determinación de la Posición de la Interfase	
		en Funcion del Tiempo	133
08	8	7 Fluidos	133
	v	EXPERIENCIAS DE CALIBRACION	
		1 Técnica Experimental	135
		2 Resultados Experimentales	137
		2.1 Kerosene Desplazando Aire	137
		2.2 Agua Desplazando Kerosene	139
		2.3 Kerosene Desplazando Agua	142
		3 Discusión de los Resultados	145
	VI	SISTEMAS INTERCONECTADOS	
а 5 ст		1 Dispositivo Experimental	149
		2 Resultados Experimentales	151
		2.1 Imbibiciones	152
		2.2 Drenajes	154
		3 Discusión de los Resultados	155
	VII	SISTEMAS CON UN CAPILAR - VARIACION DE LA	
		PRESION CAPILAR CON LA VELOCIDAD	
		1 Resultados Experimentales	162
		1.1 Imbibición en Capilares Secos	162
		1.2 Imbibicion en Capilares Premojados	166
		1.3 Drenaje en Capilares Premojados	170
		2 Discusión de los Resultados	171
		2.1.— Capilares Secos	172
	<i>.</i> ?	2.2 Capilares Premojados	175
	e	1 2 H	

VIII	EFECTOS TRANSITORIOS EN EL DESPLAZ	ZAMIENTO	
	DE UNA INTERFASE		
	1 Dispositivo y Técnica Experime	ental	179
	2 Resultados Experimentales		181
	3 Discusión de los Resultados		189
IX	CONCLUSIONES		195

REFERENCIAS

PARTE A

# DESPLAZAMIENTO DE FLUIDOS INMISCIBLES EN MEDIOS POROSOS

#### I. - INTRODUCCION

En esta parte del trabajo se presenta el estudio experimental, mediante el empleo de trazadores radioactivos, del desplazamiento de fluidos inmiscibles en medios porosos consolidados y no consolidados.

Estos procesos son de gran interés tecnológico en diversos campos tales como:

- Industria del Petróleo: Recuperación secundaria de petróleo

- Hidrología: Saturación y de-saturación de suelos

- Ingeniería Química: Desplazamiento de fluidos a través de lechos fijos granulares.

Su estudio representa. además. un importante aporte a la física básica ya que plantea la necesidad de utilizar las herramientas de la física de medios desordenados y los conceptos mas actuales en problemas de mojado de superficies.

Ello ha impulsado la realización de numerosos estudios teóricos y experimentales [1,2,3,4] que ayudan a un mejor entendimiento de los procesos involucrados.

La física del desplazamiento de fluidos inmiscibles en medios porosos implica una compleja interrelación entre el movimiento convectivo de los fluidos a través de la intrincada geometría del medio, los efectos viscosos y la presencia de interfases entre los fluidos en contacto con la matriz sólida.

Es en este último aspecto en el que se centra la atención en este trabajo: la influencia de la mojabilidad de los fluidos respecto de la matriz sólida y por lo tanto de los efectos capilares. en las características del desplazamiento resultante.

Este fenómeno es de particular interés en la recuperación secundaria de petróleo. es decir la realizada por inundación del reservorio con agua, ya que de la mojabilidad agua-petróleo-roca depende en gran parte la saturación residual de hidrocarburo {4,5,6}. Es bien sabido {3} que en rocas mojantes al agua la eficiencia del barrido con ésta es significativamente mayor que en rocas mojantes al petróleo.

En este trabajo se utiliza para el estudio experimental de los desplazamientos, una técnica que consiste en la marcación de uno o dos de los fluidos inyectados con trazadores radioactivos. El método experimental desarrollado permite medir la saturación local de los fluidos marcados, proporcional a la actividad. en función del tiempo y de la posición sobre el medio poroso.

Existen otras tecnicas que permiten también determinar el grado de saturación local de uno de los fluidos en función del tiempo: absorción de rayos X. de radiación gamma. de ultrasonido [7,8,9,10]. Sin embargo, la utilizada en este trabajo tiene como ventaja frente a las mencionadas, que permite determinar en forma independiente y simultánea las saturaciones locales de líquidos de características físicas y químicas similares, incluso de líquidos iguales inyectados en el medio poroso en diferentes ciclos. Esto se logra marcando cada uno de los fluidos con distintos trazadores.

Se estudian, de este modo, los perfiles de concentración resultantes de distintas condiciones de trabajo. En una primera etapa, y para calibrar la técnica, se realiza un desplazamiento miscible. Luego se investigan tres tipos de desplazamientos inmiscibles: con el medio poroso inicialmente saturado con el fluido menos mojante se inyecta el mas mojante marcado con el trazador, proceso denominado primera imbibición. A continuación se desplaza el mas mojante con el menos mojante (drenaje) y se vuelve a inyectar el mas mojante marcado con el mismo trazador (segunda imbibición).

En otro tipo de experiencias se comienza con el medio saturado con el fluido mas mojante marcado con un trazador, se desplaza éste con el menos mojante (drenaje) y se vuelve a inyectar el mas mojante marcado con otro trazador (segunda imbibición).

Comparando los resultados obtenidos se sacan conclusiones acerca de la influencia sobre la saturación final del lecho. de la mojabilidad de los fluidos respecto a la matriz solida y de la historia previa del desplazamiento. es decir, del orden en que los fluidos mas o menos mojantes saturaron el medio.

#### **II. - DEFINICIONES**

II.1.- Medios Porosos

Se tratara aquí de describir en terminos relativos, un medio poroso [11]. Son numerosos los materiales porosos naturales y artificiales. Suelos. rocas porosas o fisuradas, cerámicas, papel de filtro, arenas, huesos, una rodaja de pan, son apenas unos pocos ejemplos. Todos estos materiales tienen algunas características en comun que permiten agruparlos y clasificarlos como medios porosos.

Inicialmente, se podría intentar describirlos como un "sólido con agujeros". Sin embargo, ni un cilindro metálico hueco ni un solido con poros aislados se clasificarían como medios porosos, ya que se entiende que los poros deben estar interconectados, con una distribucion regular o aleatoria de poros y canales a través de todo el medio y con al menos varios pasos continuos de un lado al otro del mismo.

En definitiva, se puede definir un medio poroso como una región del espacio ocupada por materia heterogénea que posee al menos una fase no sólida distribuida uniformemente en todo el dominio. La fase sólida es llamada matriz y el espacio dentro del dominio del medio poroso que no forma parte de la matriz, espacio poral.

Un fluido podrá pasar a través del material poroso si al menos algunos poros están conectados entre sí y se llama espacio poral efectivo al espacio ocupado por los mismos. De la misma manera, si lo que interesa es el paso de fluidos a través del medio, los poros no conectados pueden considerarse parte del sólido.

Se llaman medios porosos consolidados a aquellos en los que los granos que conforman la matriz solida están unidos firmemente entre si y no tienen posibilidad de desagregarse (rocas. huesos. cerámicas).

Por el contrario, son medios porosos no consolidados aquellos formados por particulas sueltas compactadas en un

З

volumen definido (columnas cromatográficas, arenas, suelos...).

II.2.-Porosidad - Saturación

Se define la porosidad  $\phi$  de un material poroso como el cociente entre el volumen poral efectivo y el volumen total:

$$\phi = \frac{V_{p}}{V_{t}}$$

Cuando el volumen poral efectivo de un medio poroso está lleno por uno o mas fluidos (líquidos o gases), se define la saturación con respecto a uno de ellos.  $S_{\alpha}$ , como la fracción del volumen poral efectivo ocupado por el fluido considerado.

$$S_{\alpha} = \frac{V_{\alpha}}{V_{p}};$$
  $0 \le S_{\alpha} \le 1;$   $\sum_{\alpha} S_{\alpha} = 1$ 

En general, la saturación es una magnitud definida en valor medio sobre toda la muestra. Sin embargo la técnica experimental utilizada en este trabajo permite medir la saturación como una magnitud local definida sobre un volumen elemental representativo [11], es decir un volumen de dimensiones mucho mayores que las de un poro y mucho menores que las necesarias para que varíen las magnitudes macroscópicas que caracterizan al medio (por ejemplo la porosidad).

#### II.3. - Permeabilidad

Otra característica importante de un medio poroso es la mayor o menor resistencia que opone al desplazamiento de fluidos en su interior. Esta depende sólo de la geometría del medio (tamaño y distribución de poros, tamaño y grado de tortuosidad de los canales que los conectan) y no del fluido que se desplaza. Se cuantifica mediante un parametro llamado permeabilidad que queda definido a través de la relación empírica conocida como Ley de Darcy [12]:

$$\mathbf{v} = -\frac{K}{\mu} \operatorname{grad} \left( \mathbf{p} + \rho \mathbf{g} \mathbf{z} \right) \tag{1}$$

donde v es la velocidad definida como el vector caudal volumétrico por unidad de área total normal a la direccion de flujo. K es la permeabilidad del lecho poroso.  $\mu$  y  $\rho$  son la viscosidad y la densidad del fluido respectivamente. p es la presión en el seno del fluido y z es la coordenada vertical tomada positiva hacia arriba.

De acuerdo a esta definición. la permeabilidad tiene unidades de longitud al cuadrado y es una propiedad macroscópica por lo que tiene significado sólo en valor medio sobre toda la muestra.

Se ha demostrado experimentalmente [11] que la Ley de Darcy deja de ser valida si la velocidad es alta. Para determinar su rango de validez se define, por analogía con el flujo en conductos, un numero adimensional, llamado tambien número de Reynolds, que compara las fuerzas inerciales con las viscosas en el interior de los poros:

$$Re = \frac{\rho \vee d}{\mu}$$

donde d es una longitud característica de la matriz porosa que debe representar la dimensión media de los canales y poros que la conforman. Por lo general se toma d como el diámetro medio de las partículas que componen la matriz. Numerosos resultados experimentales [13,14] muestran que la Ley de Darcy es válida para Re < 10.

Cuando se trabaja con lechos porosos cilíndricos de longitud mucho mayor que el diámetro. colocados horizontalmente y el flujo es axial, el gradiente de presion es mucho mayor que el termino gravitatorio por lo que, de acuerdo a la ec. (1), la velocidad en la dirección axial queda expresada:

$$v = \frac{K \Delta p}{\mu L}$$

5 -

donde Ap es la diferencia de presión entre la entrada y la salida del lecho y L es su longitud. Mas adelante se describirán las condiciones de trabajo de las experiencias aquí presentadas y se verá que esta aproximación es válida para las mismas.

Diversas modelizaciones de medios porosos permiten derivar la Darcy partiendo de Lev de principios basicos de la. hidrodinámica [15.16], y suponiendo válidas dos hipotesis: la existencia de una longitud de escala que permita definir un volumen elemental representativo y la variación lineal de las velocidades microscopicas con el gradiente de presión aplicado a los fluidos. Utilizando dichos modelos se llega a expresiones de la permeabilidad del tipo:

## $K \propto \phi d^2$

donde d tiene el significado mencionado mas arriba.

Debe puntualizarse, sin embargo, que la Ley de Darcy no es válida en algunos casos, aún en condiciones de flujo laminar y estacionario [17]:

- en materiales heterógeneos con un amplio rango de longitudes características, desde grandes fisuras hasta poros muy pequeños, lo que impide definir una longitud característica apropiada,
- en rocas compactas con una baja densidad de fracturas donde aparecen fluctuaciones en la permeabilidad no previstas en la Ley de Darcy.

En esos casos se hace necesario un tratamiento desde el punto de vista de la física estadística de medios desordenados [17], ya que aunque la proporcionalidad entre el caudal y el gradiente de presión sigue siendo válida, no puede definirse la permeabilidad del medio en forma macroscópica.

## II.4.- Mojabilidad

Este tema se volvera a tratar extensamente en la segunda parte de este trabajo por lo que aquí sólo se darán algunas definiciones.

Cuando dos fluidos inmiscibles están en contacto con un

sólido, la mojabilidad relativa de cada fluido respecto de este. es decir la magnitud de las interacciones entre ambos fluidos y el sólido [18], determinan que la interfase entre ambos fluidos se curve formando con el sólido un angulo llamado angulo de contacto  $\theta$  (fig. 1).



Fig. 1.- Forma que adopta la interfase entre dos fluidos inmiscibles en el interior de un canal del medio poroso. El fluido sombreado es el mas mojante.

Se dice que es mojante (o mas mojante respecto del solido) el fluido hacia el cual la interfase presenta su cara convexa y no mojante (o menos mojante respecto al solido) aquel hacia el cual mira la cara concava. Es decir que midiendo  $\theta$  a través del fluido mojante será siempre  $\theta < 90^\circ$  y midiéndolo a través del no mojante será  $\theta > 90^\circ$ .

Si la interfase entre los dos fluidos no es plana, las presiones a ambos lados de la misma no serán iguales, su diferencia es llamada presión capilar y en general se define como:

$$p_{c} = p_{nm} - p_{m}$$
(2)

donde  $p_{mm}$  y  $p_{m}$  son las presiones del lado del fluido no mojante y mojante respectivamente.

De acuerdo a la Ley de Laplace (19). la presión capilar es proporcional a la tensión superficial entre ambos fluidos.  $\gamma$ . y decrece como la inversa del radio de curvatura de la superficie.

En el punto II.2.3 de la segunda parte de este trabajo se mostrara que la presión capilar puede provocar el desplazamiento de un fluido no mojante por uno mojante en ausencia de gradiente de presión externa y aún en condiciones en que el gradiente de presión externa se opone al flujo.

Como se ha dicho, un medio poroso puede visualizarse como una red tridimensional compuesta por huecos o poros · interconectados por medio de constricciones o canales. Cuando estos poros y canales están ocupados por dos líquidos inmiscibles, el avance de las interfases en su interior, durante un desplazamiento a bajas velocidades (ver par. siguiente), está controlado fundamentalmente por los efectos capilares.

Si, como consecuencia del desplazamiento. la saturación de fluido mojante aumenta. se está en presencia de un proceso llamado imbibición: si, por el contrario. la saturación de fluido mojante disminuye se trata de un drenaje. En lo que sigue se estudiarán imbibiciones y drenajes en condiciones cuasiestáticas; es decir suficientemente lentas como para poder ser descriptas por una sucesión de estados de equilibrio y donde, por lo tanto, los efectos capilares sean predominantes.

### II.5. - Parámetros Característicos

Siendo el objetivo de este trabajo el estudio de la influencia de los efectos capilares sobre las características del desplazamiento, es necesario asegurarse de que éstos sean predominantes frente a los efectos viscosos y gravitatorios.

La importancia relativa de los efectos capilares frente a la caída de presión viscosa está dada por el número adimensional llamado número capilar. Ca [20]:

Ca = 
$$\frac{\text{caída de presión viscosa}}{\text{presión capilar}}$$

que, de acuerdo a la Ley de Darcy y a la dependencia vista de la presión capilar, puede expresarse como:

$$Ca = \frac{\mu v}{\gamma \phi}$$

donde  $v/\phi$  adquiere el caracter de velocidad local o intersticial.

Las fuerzas gravitacionales pueden afectar fuertemente el desplazamiento si se usan líquidos de diferente densidad. en particular si se trabaja con lechos verticales. Este efecto puede ser estimado a través del numero de Bond definido como:

Bo = 
$$\frac{\text{caída de presión hidrostática}}{\text{presión capilar}}$$

$$Bo = \frac{\Delta \rho \ g \ d^2}{\gamma}$$

donde  $\Delta \rho$  es la diferencia de densidades de los fluidos y d es el diámetro medio de partícula del medio poroso.

En las experiencias que se describen en este trabajo los valores de Ca se mantienen por debajo de  $10^{-5}$ y el valor de Bo es menor que  $10^{-7}$ .

## **III. - TECNICA EXPERIMENTAL**

En este parágrafo se describirán las distintas etapas experimentales seguidas para obtener los perfiles de saturación del fluido inyectado en función del tiempo y de la posición sobre el medio poroso.

En el primer punto se detalla la construcción de los medios porosos consolidados y no consolidados utilizados. A continuación se explican las técnicas empleadas para determinar la porosidad y la permeabilidad de los mismos. En el punto siguiente se mencionan las características de los fluidos y trazadores radioactivos usados y se justifica su elección en base a sus propiedades físicoquímicas. Por último, en el punto III.5, se describen el equipo y la técnica experimental desarrollada para obtener los perfiles de saturación.

#### III.1. - Preparación de los Medios Porosos

En las experiencias realizadas se utilizan dos tipos de medios porosos {21}: lechos artificiales de microesferas de vidrio (no consolidados) y rocas naturales del tipo denominado Berea (consolidados). Estas últimas son cilindros de 5 cm de diámetro y 30 cm de longitud.

Para evitar la adsorción de agua en las arcillas contenidas en las rocas, éstas se calcinan a 1000 <sup>°</sup>C durante 24 hs. Luego, se pinta la superficie lateral con resina epoxy para impedir el flujo de los liquidos a través de la misma.

En uno de los extremos. el que se usara como cara de inyección, se fija con la misma resina una pieza de acrílico que actúa como distribuidor del fluido inyectado (fig.2).

En el extremo opuesto se fija una brida a la que se sujeta con tornillos pasantes una pieza colectora del líquido efluente (fig. 2). El diseño de la misma evita la formación de líneas de corriente convergentes hacia un solo punto ya que toda la cara de salida del medio se encuentra a presión atmosférica.



Fig. 2. - Detalle de construcción de un medio poroso consolidado.

Los lechos artificiales se construyen compactando en un cilindro de acrílico, de 4 cm de diametro y 39 cm de longitud. cerrado en un extremo por un filtro de vidrio sinterizado, microesferas de vidrio de diámetros comprendidos entre 200 y 400  $\mu$ .

El proceso de compactación es crítico en este tipo de medios ya que de él depende la homogeneidad del lecho y la repetitividad de los resultados obtenidos. Por ello se desestimó el método tradicional de compactar las microesferas haciendo vibrar el medio mientras se llena, ya que dicho método provoca estratificación si no se usan microesferas monodispersas.

Fue necesario entonces, diseñar, construir y poner a punto un equipo que asegura un lecho homogéneo. no estratificado y con valores de porosidad bajos (0.32) y repetitivos. En el Anexo I se desarrolla el principio de funcionamiento [22] y se describen las características técnicas del mismo.

Una vez concluído el proceso de compactacion, se cierra el cilindro con otro disco poroso que, al igual que el del otro extremo, deja pasar los fluidos pero no las microesferas. Finalmente se adosan a ambos extremos piezas de distribución y colección de fluidos, similares a las utilizadas en los lechos consolidados.

En la Tabla I se indican las características principales de ambos medios.

	Lecho de microesferas	Berea
Longitud (cm)	39 ± 0,1	30 ± 0,1
Diámetro (cm)	4 ± 0,1	5 ± 0,1
Porosidad (%)	$32 \pm 0.5$	22 ± 0,5
Permeabilidad * 10 (cm <sup>2</sup> )	36 ± 0,5	1,3 ± 0,2

Tabla I: Características de los medios porosos

III.2.- Saturación de los Lechos - Determinación de la Porosidad

Para saturar el lecho con el fluido elegido se emplea una técnica de vacío ya que es necesario evitar la presencia de aire residual.

La misma consiste en colocar el lecho en posición vertical en un recipiente en el que se hace vacío durante 6 hs. Luego y mientras se continúa haciendo vacío, se inyecta lentamente el fluido, previamente desgasado, por la parte inferior del recipiente. El líquido asciende en el lecho por diferencia de presión hidrostática y capilaridad hasta saturarlo totalmente. Como precaución adicional se continúa haciendo vacío durante 6 hs. mas.

Una vez concluído el proceso se sella el medio con una válvula y se pesa. Por diferencia con el peso del mismo vacío, se obtiene el peso del líquido en su interior. Se descuenta de este valor el peso del líquido que ocupa el volumen muerto correspondiente al sistema de distribución y, utilizando la densidad del fluido, se calcula el volumen del líquido que ocupa el espacio poral. La porosidad media se obtiene haciendo el cociente entre el volumen del fluido y el volumen total del lecho. En el parágrafo IV.2 se muestra que este valor medio coincide dentro del 4 % con los valores locales de la porosidad obtenidos experimentalmente. Esto permite considerar al lecho como homogéneo.

Los valores medios de la porosidad de ambos medios se muestran en la Tabla I.

III.3. - Determinación de la Permeabilidad

En la fig. 3 se esquematiza el dispositivo empleado. La entrada del lecho se conecta a un sistema de inyección a presión constante y la salida a una balanza electrónica de pesada continua.



Fig. 3.- Esquema del dispositivo empleado para determinar la permeabilidad.

La altura del fluido en el reservorio A fija la presion de entrada, que se mide en el manómetro B. El tubo de descarga C permite mantener constante la presión de entrada durante toda la experiencia.

La presión de salida es la atmosférica. Por medio de una computadora, conectada a la balanza D. se mide la masa acumulada en función del tiempo. Con estos datos se calcula el caudal

resultante. Se repite el proceso para distintos gradientes de presión aplicados  $\Delta p$ . Se grafica caudal en función del  $\Delta p$ aplicado y utilizando la Ley de Darcy (ec 1), se calcula la permeabilidad del lecho que es proporcional a la pendiente de la recta.

En la fig. 4 se muestra, a modo de ejemplo, la variación del caudal de agua con la presión aplicada para el lecho de microesferas y en la Tabla I se indican los valores de la permeabilidad obtenidos para los dos medios utilizados.





III.4. - Fluidos y Trazadores

Para elegir los fluidos a utilizar se tuvieron en cuenta

los siguientes factores:

- Mojabilidad relativa a los medios porosos empleados. Para verificar que uno de los fluidos fuera mas mojante que el otro se realizaron pruebas consistentes en saturar una muestra del mismo material que el medio poroso con el fluido 1, el mas liviano y en principio el menos mojante. Luego se sumerge totalmente la muestra, en posición vertical, en una cubeta que contiene el fluido 2 en la parte inferior y el 1 en la superior. Si el fluido 2 asciende en la muestra por encima de la interfase entre ambos fluidos, exterior al medio, se verifica que éste es mas mojante que el fluido 1 (ver par. II.2 de la parte B de este trabajo)

- Grado de inmiscibilidad mutuo y del trazador respecto de ambos. Los fluidos elegidos deben ser inmiscibles entre sí y el trazador debe ser soluble en uno de ellos e insoluble en el otro, para asegurar que los datos de actividad obtenidos sean proporcionales a la concentración de uno solo de los fluidos. Estos datos se obtuvieron de tablas [23].

-Viscosidades relativas. Las viscosidades de los fluidos utilizados deben ser del mismo orden para impedir la aparición del fenómeno de digitación por viscosidad [24]. El mismo puede ser descripto someramente de la siguiente forma: si un líquido menos viscoso desplaza a otro mas viscoso, aparece en la interfase una inestabilidad cuyo resultado es que el líquido desplazante avanza formando dedos que penetran en el líquido desplazado.

- Densidades relativas. Las densidades de ambos fluidos deben ser del mismo orden para evitar que los efectos gravitatorios sean mas importantes que los capilares.

Teniendo en cuenta estos factores, se usó como fluido mojante en todos los casos agua destilada ( $\rho = 1 \pm 10^{-4} \text{gr/cm}^3$ ,  $\mu = 1 \pm 10^{-3}$  cp). Como fluido no mojante se utilizó, en las experiencias descriptas en primer término, kerosene suministrado por YPF de densidad  $\rho = 0.75 \pm 0.01 \text{ gr/cm}^3$  y viscosidad  $\mu =$ 1.4 ± 0.04 cp.

En la experiencia descripta en el par. V.2.2, se utilizó

como fluido no mojante ciclohexano pro-analisis provisto por la firma Dorwill, de densidad  $\rho = 0.80 \pm 0.01 \text{ gr/cm}^3$  y viscosidad  $\mu = 1 \pm 0.04 \text{ cp}$ .

Tanto el kerosene como el ciclohexano son inmiscibles con el agua, siendo las tensiones interfaciales entre ambos y el agua 30 ± 1 dinas/cm<sup>2</sup> y 43 ± 1 dinas/cm<sup>2</sup> respectivamente.

Como trazador radioactivo se usó  $I^{131}$ , emisor  $\gamma$  de 360 Kev de energía y 8 días de vida media y en la última experiencia se utilizo además  $Tc^{99}$ . también emisor  $\gamma$  de 141 Kev de energía y 6 hs. de vida media. Ambos fueron provistos por la CNEA en solución acuosa y tienen baja solubilidad en el kerosene y el ciclohexano, lo que asegura que la actividad registrada indica sólo la presencia de agua.

III.5. - Descripción del Equipo y Técnica Experimental

III.5.1- Equipo Experimental

En la fig. 5a se muestra un esquema del dispositivo experimental desarrollado [25] y puesto a punto para la medición de la saturación de agua en función de la posición y del tiempo.



Fig. 5 a. - Esquema del dispositivo experimental.

Consta de:

 A) Lecho poroso colocado horizontamente dentro de una caja de plomo con ranura al frente y sobre una mesa regulable en altura. Ver detalle en fig. 5 b.

B) Sistema de inyección de fluido, a presión o caudal constante. Si la experiencia se realiza a diferencia de presión aplicada constante. el sistema de inyección diseñado permite mantener la altura de fluido entrante constante con un error de lmm y mínimo riesgo de derrame de material radioactivo. En la fig. 5c se esquematiza el dispositivo empleado.



Figs. 5 b y c.- b: Detalle de la ubicación del lecho frente al detector. c: Dispositivo empleado para la inyección de fluido en las experiencias realizadas a diferencia de presión constante.

Para realizar experiencias a caudal constante fue necesario diseñar y construir una bomba de jeringa ya que las disponibles comercialmente o bien resultaban inadecuadas por su baja capacidad o inaccesibles por su alto costo. La bomba construída tiene una capacidad de 1000 cm<sup>3</sup> y caudal variable entre 0.008 cm<sup>3</sup>/seg y 0.028cm<sup>3</sup>/seg. El líquido radioactivo se coloca en un recipiente blindado con plomo y es desplazado del mismo hacia el lecho, por el fluido contenido en la bomba. en general aceite. De esta manera se evita contaminar la bomba. En el Anexo II se especifican las características técnicas y el principio de

funcionamiento de la misma.

C) Detector de radiación y sistema de colimación montado sobre una bancada de torno que permite su desplazamiento a lo largo del lecho. El detector es un contador de centelleo adecuado para radiación gamma.

El sistema de colimación consiste en un bloque de plomo con una ranura de 5 x 0.25 cm. El espesor del bloque (18 cm) fue calculado para obtener una resolución en la posición de 3 mm. El carro del torno sobre el que está montado el detector se mueve sobre la bancada impulsado por un motor de corriente continua y se logra una precisión en la posición de  $\pm$  2 mm.

D) Balanza de pesada continua. conectada a una computadora, donde se mide la masa del líquido efluente. Este se recoge en una probeta graduada lo que permite, mediante un sistema de espejos, medir el volumen.

E) Multicanal-computadora que registra la actividad de la muestra, posición del detector, masa del líquido efluente y tiempo. Para ello se realizó un programa que permite ingresar por teclado la posición deseada del detector respecto del lecho. Esta se decide de acuerdo al valor de actividad obtenido en la posición precedente.

#### III.5.2. - Técnica Experimental

La experiencia comienza con el lecho totalmente saturado con uno de los fluidos. Por medio de una válvula, se conecta al mismo el sistema de inyección de agua marcada con el trazador radioactivo. Inmediatamente se comienzan a tomar medidas de la actividad, desplazando el detector a lo largo del lecho, desde la cara de entrada hacia la cara de salida. a intervalos de 2 cm.

Cuando no se detecta actividad en dos posiciones consecutivas se vuelve el detector a la cara de entrada y se recomienza el barrido.

Los trazadores son entregados por la CNEA con una actividad de 10 mCi. lo que permite obtener lecturas con buena resolución

en 10 seg. El tiempo de desplazamiento del detector de una posición a otra es de 5 seg aproximadamente. El tiempo total de barrido del lecho completo es, entonces. de unos 5 min: suficientemente corto frente a\_ la duración total de la experiencia, que, a los caudales utilizados, es como mínimo de 80 min.

La actividad registrada en cada posición es proporcional al volumen de agua marcada presente en la fracción de volumen de medio poroso que se encuentra frente a la ranura. Dicha fracción se puede estimar como el area del medio por una longitud igual a la resolución del dispositivo de colimación mas el error en la posición del detector. Esta longitud es aproximadamente 5 mm. lo que comparado con los 20 mm que hay entre cada posición estudiada asegura no existe superposición que en las determinaciones de actividad.

Así, los valores de actividad obtenidos son proporcionales a la saturación de agua en dicha fracción de volumen.

Estos valores se registran en la computadora ajustados convenientemente por decaimiento {26}, junto con los valores de la posición correspondientes.

Simultáneamente se mide en la balanza y se registra en la computadora la masa de líquido efluente en función del tiempo lo que permite calcular el caudal resultante.

En el caso de desplazamientos inmiscibles, se usa este método para determinar el caudal mientras el liquido efluente sea uno solo de los fluidos. Esto se controla visualmente. mediante el sistema de espejos, observando la probeta donde se efluente. Cuando comienzan a salir ambas recoge el fases continúa registrando el caudal total simultáneamente. se midiendo el volumen acumulado en función del tiempo.

La corrida concluye cuando no se observa mas variación de la actividad en ninguna de las caras.

De esta manera se obtienen en cada experiencia, los perfiles de saturación de agua en función del tiempo, para cada posición estudiada y la variación del caudal total con el tiempo.

## IV. - DESPLAZAMIENTOS MISCIBLES

En este capítulo se muestran los resultados obtenidos para un desplazamiento miscible [21] en el que, al no estar presentes los efectos capilares, las ecuaciones hidrodinámicas que gobiernan el desplazamiento tienen solución analítica.

Es posible, entonces, calcular el asi llamado coeficiente de dispersión y comparar su valor con las abundantes referencias bibliográficas al respecto (11.16.27.28.29). De esta manera, esta etapa sirve de control de la técnica empleada y, como se verá, de verificación de la homogeneidad de la muestra.

## IV.1. - Elementos Teóricos

En este punto se hace una breve reseña de las principales características de la teoría de desplazamientos miscibles, ya que la misma se encuentra ampliamente desarrollada en las referencias citadas en el párrafo anterior.

Cuando un fluido desplaza a otro miscible con él. en el interior de un medio poroso, se produce una zona de transición o mezcla. Dispersión es el término con que se describe a todos los fenómenos físicos que gobiernan la evolución de esa zona de transición.

Estos pueden ser diferenciados en dos grandes tipos: dispersión hidrodinàmica, asociada al desplazamiento de las partículas de fluido a través de la compleja geometría del medio poroso y dispersión molecular asociada a la difusión molecular a lo largo de una línea de corriente y entre líneas de corriente adyacentes.

La dispersión hidrodinamica se debe al hecho de que la distribución de velocidades de un líquido que fluye a través de un medio poroso no es uniforme. Esto es consecuencia de los efectos de borde que actúan de tres maneras diferentes:

 a) la velocidad es cero sobre la superficie solida. lo cual crea un gradiente de velocidad dentro de cada canal,

b) la variación en el diametro de los canales provoca

diferencias entre las velocidades maximas a lo largo del eje de cada canal.

c) debido a la distribución aleatoria de "obstáculos", las direcciones de las líneas de corriente fluctúan respecto de la dirección principal del flujo y las amplitudes de las velocidades en cada línea de corriente son distintas.

Estos tres procesos combinados constituyen la dispersión hidrodinámica que puede interpretarse como la superposición de los efectos en dos direcciones, una paralela a la dirección principal del flujo (dispersión hidrodinámica longitudinal) y otra perpendicular a dicha dirección (dispersión hidrodinámica transversal).

La dispersión asociada a la difusión molecular también puede entenderse como suma de dos mecanismos, uno longitudinal y el otro transversal. El primero representa la difusión molecular que se produce en el interior de cada línea de corriente, que tiende a anular el gradiente de concentración longitudinal.

El segundo. la transferencia de masa que tiene lugar entre dos líneas de corriente adyacentes y que tiende a anular el gradiente de concentración perpendicular al flujo.

La ecuación macroscópica de dispersión ha probado ser la mejor representación de este fenómeno y se llega a la misma partiendo de tres suposiciones básicas: a) el medio poroso es homogéneo e isotrópico, b) los eventos que ocurren en un intervalo de tiempo son independientes de los que ocurren en cualquier otro intervalo de tiempo. c) el movimiento de una partícula obedece las leyes de flujo laminar.

Suponiendo válidas estas tres condiciones, considerando flujo unidireccional con velocidad media  $\mathbf{v}$  (v,0,0) y despreciando el gradiente de concentración perpendicular al flujo se llega a:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = - u \frac{\partial c}{\partial x} + D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}$$

donde c es la concentración de fluido inyectado que presenta la

mezcla a una distancia x del punto de inyección y al tiempo t, u es la velocidad local del fluido (u =  $v/\phi$ ) y D es un escalar llamado coeficiente de dispersion longitudinal y que tiene unidades de longitud al cuadrado sobre tiempo.

En la situación experimental aqui presentada, inyección de un escalón, las condiciones iniciales son:

$$c(x,0) = \begin{cases} C_{2} & s_{1} \times \leq 0 \\ 0 & s_{1} \times > 0 \\ 0 & s_{1} \times > 0 \end{cases}$$

y la solución de la ecuación es [11]:

$$c(x,t) = \frac{C_{\circ}}{2} \left[ 1 - \operatorname{erf} \left( \frac{x - ut}{2 \sqrt{Dt}} \right) \right]$$

donde:

$$\operatorname{erf}(\mathbf{x}) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{0}^{\mathbf{x}} e^{-\xi^{2}} d\xi$$

Los perfiles de concentración resultantes se muestran en la fig. 6.



Fig. 6.- Perfiles de concentración para valores crecientes del tiempo.

Cualitativamente. el coeficiente de dispersion está relacionado al tiempo medio de transito y al ensanchamiento espacial de la zona de transición  $\Delta x$  por [30]:

## $\Delta x = \sqrt{Dt}$

lo que pone de manifiesto el significado físico del coeficiente de dispersión: en iguales condiciones de trabajo, para el mismo tiempo. la zona de mezcla sera mayor en un medio con mayor coeficiente de dispersión.

El coeficiente de dispersión longitudinal depende del coeficiente de difusión molecular  $D_m$  del fluido inyectado: de la velocidad de inyección v y de la geometría del medio poroso a través de la porosidad  $\phi$  y de la longitud media de sus poros d.

Numerosos resultados experimentales [11.31], así como modelos teóricos (32.33], muestran que el cociente entre D y  $D_m$ puede ser expresado en función de un parametro adimensional llamado número de Peclet definido como:

$$Pe = \frac{u d}{D_m}$$

que traduce la competición entre los efectos de convección (ud) y los asociados a la difusión molecular  $(D_{-})$ .

En 1963 Pfannkuch [31], reunió en una sola curva 157 resultados experimentales del coeficiente de dispersión longitudinal en función del número de Peclet, obtenidos por diversos autores en experiencias en medios porosos no consolidados con flujo unidireccional.

Dicha curva es conocida con el nombre de curva de Saffman [32] por ser este autor quien obtuvo, mediante un modelo, la mejor aproximación teórica de los datos experimentales.

Tanto de los datos experimentales como de los diversos modelos teóricos que los ajustan, se desprende que para altas velocidades de invección (Pe > 5), el mecanismo predominante es la dispersión hidrodinámica y D es. en ese rango, del orden de u d. Cuando las velocidades de invección son bajas (Pe < 1), predomina la difusión molecular y D  $\simeq$  D. En la región de

velocidades intermedias (1 < Pe < 5) ambos efectos son del mismo orden.

#### IV.2. - Resultados Experimentales

Como se ha explicado en el punto III.5.2. la técnica experimental utilizada permite obtener la evolución en el tiempo de la saturación de agua inyectada, para cada posición del lecho poroso estudiada.

En la fig. 7 se muestran los resultados obtenidos para una corrida en la que el medio (lecho de microesferas) estaba inicialmente saturado con agua y se le inyecta agua marcada con iodo a caudal constante.



Fig. 7.- Variación de la concentración de agua inyectada con el tiempo en 4 caras del lecho de microesferas.

El caudal utilizado en este caso fue de 0.4 cm<sup>9</sup>/min, por lo que, tomando el coeficiente de difusión molecular del agua como  $10^{-5}$  cm<sup>2</sup>/seg, el número de Peclet resulta Pe  $\simeq 10$ . lo que indica que se está trabajando con una velocidad de inyección tal que la dispersión hidrodinámica es predominante.

Se ha graficado, para cuatro posiciones del lecho, cuya distancia desde la cara de entrada se indica en la figura, la concentración normalizada en función del tiempo. Se observa que los perfiles de crecimiento de cada una de ellas son similares. Esto es un índice de la homogeneidad del medio.

El procesamiento de estos datos es el siguiente. En primer lugar, se ajustan independientemente cada una de las curvas con la solución de la ecuación de dispersión. Para ello se reemplaza x por su valor correspondiente (4, 16, 24 y 32 cm en el caso de la figura) y u por el valor  $Q/A\phi$ , donde Q es el caudal medido durante la experiencia. A el área del lecho normal al flujo y  $\phi$ la porosidad determinada de acuerdo a lo explicado en III.2.

Se encuentra, entonces, para cada curva el D que minimice las diferencias entre los valores teóricos y los experimentales. Los D así obtenidos se muestran en la Tabla II y son iguales dentro del 4 %, lo que indica nuevamente la homogeneidad del lecho ya que se utilizó para todas las caras la porosidad media. Si hubiera variaciones en la porosidad local respecto de la media, los coeficientes de dispersión que ajustan cada uno de los perfiles diferirían entre sí.

Cara (cm)	4	16	24	32
D * 10 <sup>4</sup> (cm <sup>2</sup> /seg)	1.05	1,04	1,03	1.07

Tabla II: Coeficientes de dispersión correspondientes a cuatro caras del lecho, evaluados a partir de los datos experimentales.

Por otra parte, el valor obtenido coincide con los determinados experimentalmente mediante otras técnicas por
diversos autores [31], para condiciones similares de desplazamiento y se cumple que para la velocidad utilizada (Pe  $\simeq$  10), es D  $\simeq$  u d.

Otra forma de visualizar la calidad del ajuste logrado es representar los datos experimentales en función de la variable móvil  $\xi = (x_i - ut)/\sqrt{t}$ , donde  $x_i$  es la coordenada correspondiente a cada cara estudiada.

Si los datos experimentales responden a una solución como la mencionada deberan superponerse en una unica curva. Esta representación se muestra en la fig. 8 en la que también se ha graficado la curva teórica. La concordancia es satisfactoria, quedando así probada la eficiencia de la técnica utilizada y la homogeneidad del medio.



Fig. 8.- Concentración de agua inyectada en función de la variable móvil  $\xi = (x_i - ut)/\sqrt{t}$ .

## V. - DESPLAZAMIENTOS INMISCIBLES

## V.1. - Elementos Teóricos - Antecedentes

Cuando un fluido desplaza o otro inmiscible con él en el interior de un medio poroso, no existe entre ambos una interfase abrupta, sino que inmediatamente se crea entre los dos fluidos una zona de transición o de mezcla en la que ambos coexisten en proporciones similares.

Esta zona de transición avanza en la dirección del flujo dejando tras de si al medio parcialmente saturado con el fluido desplazante. Que la saturación sea parcial se debe a que el fluido que originalmente ocupaba el medio, no es desplazado totalmente sino que queda una cierta cantidad del mismo atrapada en forma de islas aisladas y/o de película sobre las paredes del medio.

Precisamente esta cantidad de fluido residual es la que interesa disminuir cuando se barre un reservorio de petróleo con agua, en el proceso conocido como recuperación secundaria.

La aparición de la zona de transición, así como el hecho de que, aún a tiempos de barrido muy largos, quede fluido desplazado residual, se debe a los fenomenos de convección de las partículas del fluido desplazante a través de la compleja geometría del medio poroso y, en el caso que se está tratando aquí de fluidos inmiscibles, a los efectos capilares que aparecen en el interior de los canales y poros donde están presentes las interfases entre ambos fluidos.

Al igual que en desplazamientos miscibles, se conoce con el nombre de dispersión a todos los fenómenos físicos que gobiernan la evolución de la zona de transición.

Diversas aproximaciones teóricas al problema [11,34,35], tan complejo como importante desde el punto de vista económico, permiten obtener. después de diversas simplificaciones, una ecuación diferencial que describe la variación de la concentración del fluido desplazante. o saturación, en función de la posición y del tiempo. Dicha ecuación no es resoluble

analíticamente, por lo que se recurre en general a soluciones numéricas o gráficas o a simplificaciones adicionales que implican descartar fenómenos importantes.

Desde el punto de vista experimental, en la mayoría de los casos, se determina la evolución en el tiempo de la saturación del medio a partir del estudio de la proporción de ambos fluidos en el efluente. Aunque esta técnica brinda menos información, es mas sencilla de implementar que las que permiten estudiar los perfiles de saturación en el interior del medio poroso.

Entre estas pueden mencionarse: absorción de rayos X o  $\gamma$ , de ultrasonido, tomografía, imágenes por resonancia magnética nuclear o la desarrolada en este trabajo, detección de radiación  $\gamma$  emitida por uno de los fluidos.

En el punto siguiente se darán los elementos fundamentales de las aproximaciones teóricas mencionadas y sus predicciones mas importantes. así como los resultados experimentales mas representativos descriptos en la bibliografía consultada.

## V.1.1.- Generalización de la Ley de Darcy

La Ley de Darcy enunciada en II.3 para flujos monofásicos. se generaliza para el caso de flujos bifásicos aplicando el concepto de permeabilidad modificado por la presencia de la segunda fase [11,28,34]. Así, por analogía, se supone que cuando dos fases fluyen simultáneamente en el interior de un medio poroso, cada una lo hará con una velocidad dependiente de su saturación y proporcional al gradiente de presión en dicha fase:

$$\mathbf{v}_{m} = - \frac{k_{m}(S_{m})}{\mu_{m}} \text{ grad } p_{m}$$
$$\mathbf{v}_{nm} = - \frac{k_{nm}(S_{nm})}{\mu_{nm}} \text{ grad } p_{nm}$$

° (3)

donde  $k_m$  y  $k_{nm}$  reciben el nombre de permeabilidades efectivas al fluido mojante y no mojante respectivamente. Y dependen, como se

ha hecho explícito en las fórmulas, de la saturación de cada fluido.

Los subindices en las presiones son necesarios ya que la presión en el mojante y en el no mojante son diferentes, precisamente, su diferencia es la presión capilar definida en el punto II.4.

Ya que un medio poroso está compuesto por numerosos capilares interconectados. de diferentes tamaños, se puede pensar que esta presión capilar es distinta en uno u otro tubo. Sin embargo, si se estudian procesos cuasiestáticos, la presión debe ser uniforme en cada una de las fases y, en consecuencia, puede hablarse sin ambigüedad de presión capilar del medio en cada estado de saturación.

A continuación se darán las características principales de la variación de la presión capilar y de las permeabilidades efectivas con el estado de saturación del medio.

# V.1.2. - Presión Capilar

La forma en que la presión capilar depende de la saturación del medio ha sido objeto de numerosos estudios experimentales [2,11,28,34,36]. En la fig. 9 se muestra una curva experimental típica que muestra esta dependencia.

El proceso para obtenerla consiste esencialmente en partir de un medio totalmente saturado con un fluido mojante e inyectarle uno no mojante a presiones crecientes. Una vez alcanzado el equilibrio en cada paso de presión se mide la saturación del medio. De esta manera se obtiene la curva de drenaje (1).

Como se ve, a medida que la saturación del fluido mojante es menor, es necesario aplicar saltos de presión cada vez mas grandes para obtener una disminución de dicha saturación.

Esto es debido a que, en cada paso de presión, se está obligando al fluido no mojante a entrar en los poros mas pequeños lo que, de acuerdo a la Ley de Laplace, implica mayor presión.



Fig. 9. – Curva típica de variación de la presión capilar (II) con la saturación ( $\phi$ ), 1: drenaje, 2: imbibición [11].

De hecho, es impracticable reducir la saturación residual del mojante a cero, aunque un trabajo reciente de Dullien (37), muestra que esta saturación residual sigue disminuyendo si la presión externa se aumenta a valores muy altos, sin llegar a un valor mínimo definido.

Para obtener la curva de imbibición se va disminuyendo paso a paso la presión externa sobre el no mojante, lo que permite al mojante penetrar en el medio nuevamente. Se mide en cada paso la saturación resultante y se obtiene la curva (2). Esta difiere de la anterior, lo que implica que, a una dada saturación, son posibles varios estados de equilibrio. Se dice que la curva de presión capilar presenta histéresis.

Cuando se llega a presión externa, o presión capilar, cero, no todo el líquido no mojante ha sido expulsado del medio: una fracción del mismo ha quedado atrapado conformando lo que se conoce con el nombre de saturación residual de no mojante.

# V.1.3. - Permeabilidad Relativa

Respecto de las permeabilidades efectivas, se han realizado también numerosos estudios experimentales [11,16,34,38] para determinar su variación con la saturación de uno de los fluidos. la fig. 10 se muestran curvas típicas En de las permeabilidades relativas (cociente entre permeabilidades efectivas y permeabilidad absoluta o monofásica del medio) en función de la saturación, obtenidas en experiencias de flujo simultáneo de ambos fluidos.



Fig. 10. - Curvas típicas de variación de las permeabilidades relativas con la saturación, w: mojante, nw: no mojante [11].

Resulta natural que cuando se considera sólo el flujo de uno de los fluidos en un punto, la permeabilidad del medio disminuya respecto de ese fluido, ya que parte del espacio poral en la vecindad de ese punto está ocupado por otro fluido. Esto explica la dependencia de la permeabilidad relativa de la saturación.

Como se ve en la fig. 10, ambos fluidos están en movimiento simultáneamente solo para saturaciones del fluido mojante mayores que  $S_{mo}$  y menores que  $1-S_{nmo}$ . Esto se interpreta suponiendo que para saturaciones del mojante menores que  $S_{mo}$ 

éste queda distribuido en films y/o islas que no forman un camino continuo de un lado a otro del medio, por lo que no puede ser movilizado con los gradientes de presión utilizados. Es por esto que se conoce a  $S_{mo}$  con el nombre se saturación irreducible del mojante.

Analogamente, habrá una saturación mínima del no mojante,  $S_{nmo}$ , que permita tener en el interior del medio, al menos un camino continuo de dicho fluido para poder movilizarlo con los gradientes de presión empleados.  $S_{nmo}$  es, entonces, la saturación irreducible del no mojante.

El hecho de que  $k_m$  y  $k_{nm}$  sean distintos de cero no significa que no haya islas aisladas de uno y otro líquido sino que hay al menos un camino continuo para el fluido correspondiente.

Otra característica de la dependencia mostrada en la figura es que, a altas saturaciones de fluido mojante, la permeabilidad relativa al mojante es mucho menor que 1, mientras que a bajas saturaciones del mojante, la permeabilidad relativa del no mojante es cercana a 1.

Esto indica que la fase no mojante ocupa primero los poros y canales mas grandes ya que, de acuerdo a la Ley de Laplace, es necesaria menor presión para invadir un poro de mayor diámetro.

A medida que crece la saturación del no mojante, éste deja a la fase mojante ocupando poros de tamaño medio progresivamente menores. El resultado es que, a saturación máxima del fluido no mojante, la permeabilidad del medio a dicho fluido no se aleja mucho de su valor absoluto ya que solo los canales y poros mas pequeños están obstruídos por la fase mojante residual.

Por el contrario, cuando el fluido mojante llega a su saturación máxima, son los canales y poros mas grandes los ocupados por la fase no mojante, lo que da como resultado una permeabilidad al mojante mucho menor que la permeabilidad absoluta.

## V.1.4. - Perfiles de Saturación

Para evaluar teoricamente la forma de los perfiles de saturación en un proceso de invasión, es necesario resolver el sistema de ecuaciones formado por la ley de Darcy generalizada (3) y las ecuaciones de conservación de la masa para cada uno de los fluidos. Para fluidos incompresibles y medios homogéneos, éstas pueden expresarse como [11]:

 $\frac{\partial S_{m}}{\partial t} + \operatorname{div} \mathbf{v}_{m} = 0$   $\frac{\partial S_{nm}}{\partial t} + \operatorname{div} \mathbf{v}_{nm} = 0$ 

A este sistema hay que agregar la definición de presión capilar (2) y suponer que aún en movimiento cada fase tiene una única presión,  $p_m y p_n respectivamente. De este modo la <math>p_c$  del sistema es única para cada estado de saturación. Esto es razonable para velocidades de inyección suficientemente bajas como para que el número capilar se mantenga << 1, es decir que predominen los efectos capilares sobre los viscosos.

Combinando las ecuaciones mencionadas y teniendo en cuenta que  $S_m + S_{nm} = 1$  y que  $v_m + v_{nm} = v$ , se llega a una única ecuación para la saturación  $S_m$  de la forma [39]:

$$\frac{\partial S_{m}}{\partial t} = -C(S_{m}) \frac{\partial S_{m}}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} \left[ D(S_{m}) \frac{\partial S_{m}}{\partial x} \right]$$
(4)

donde se ha llamado:

$$C(S_m) = f_1(S_m) \vee y$$
  $D(S_m) = f_2(S_m) \frac{\partial p_c}{\partial S_m}$ 

con f y f funciones de las permeabilidades relativas y por lo tanto de la saturación del medio.

La (4) es una ecuación diferencial de segundo grado no

lineal, y no puede resolverse analiticamente excepto para elecciones especiales de la dependencia de la presión capilar y de las permeabilidades con la saturación [39].

Sin embargo, escribirla de esta manera, ayuda a interpretar al fenómeno de dispersión como una superposición de un fenómeno convectivo con una velocidad local C que depende de la saturación, y uno dispersivo con un coeficiente de dispersión D que también depende de la saturación.

Lo habitual en la industria petrolera es simplificar el problema despreciando los efectos capilares. Buckley. Leverett y Welge (40,41) resolvieron la ecuacion (4) considerando  $p_c = 0$ . Posteriormente Lefur (42) modifico estas soluciones teniendo en cuenta los efectos capilares. En la fig.11 se muestran los perfiles de saturación resultantes de ambos métodos.



Fig. 11.- Comparación de los perfiles de saturación teóricos con y sin efectos capilares [40,41,42].

Se observa que con la solución de Buckley-Leverett se obtiene un perfil que presenta un salto abrupto de saturación, mientras que la de Lefur "suaviza" dicho salto al tener en cuenta los efectos capilares.

Sin embargo, en ambos casos es necesario contar con datos experimentales sobre la variación de las permeabilidades relativas con la saturación y el método de Lefur exige además una resolución mumérica.

Análisis detallados realizados por numerosos investigadores llegan a la conclusión que la solución de Buckley-Leverett-Welge es una relativamente buena aproximación para flujos altos, pero es mala para bajos caudales. habituales en la recuperación secundaria de petróleo, donde los efectos capilares son predominantes.

Por otra parte, de Gennes [43] en un estudio teórico cualitativo, replantea el problema de flujos bifásicos y llega a una ecuación igual a la (4) sin hacer uso de la Ley de Darcy, analizando teóricamente las posibles soluciones en distintas condiciones de flujo.

Analiza con este modelo teórico los perfiles que se obtendrían en una experiencia de imbibición pasiva: donde se pueda considerar la velocidad de inyección nula. Con esta suposición concluye que los perfiles de saturación pueden brindar cierta información acerca del tipo de sistema con el que se está trabajando.

Así, predice que si el coeficiente de dispersión de la ec. (4) tiende a cero cuando la saturación del fluido entrante es muy baja, se obtendrá un perfil de saturación que se corta abruptamente a una distancia finita de la entrada del lecho (fig 12 a). Esto indicaria que el líquido entrante está distribuido en forma de islas macroscópicas que se superponen. Llama a este tipo de perfil, perfil "hipodispersivo" o de menor dipersión que la correspondiente a un desplazamiento miscible.

Por el contrario, si el coeficiente de dispersión tiende a infinito para bajas saturaciones. el perfil de saturación obtenido se extiende a lo largo de toda la muestra (fig. 12 b), disminuyendo con la distancia mas lentamente que en el caso de desplazamientos miscibles. Según su teoría este tipo de perfil indica que el líquido entrante está distribuido en forma de islas que no se superponen y estan conectadas entre sí sólo por

una película que las une. A este caso lo llama perfil "hiperdispersivo".



Fig. 12.- Perfiles de saturación teóricos, a: régimen hipodispersivo, b: régimen hiperdispersivo [43].

En base a estas ideas, Bacri, Salin y Leygnac [10,44] explican sus importantes resultados experimentales. Mediante una técnica de transmisión acústica, colocando emisores y receptores de ultrasonido en diversas posiciones a lo largo del lecho, miden la absorción que se produce en uno de los dos fluidos. Obtienen así, los perfiles de saturación en función de la posición y del tiempo.

Realizan las experiencias en un lecho no consolidado de microesferas de vidrio, previamente saturado con el líquido mas

mojante (agua) y luego drenado con el líquido menos mojante (aceite). Es decir que trabajan en condiciones de segunda imbibición [45]. Los caudales que utilizan, que mantienen constantes durante la experiencia, son suficientemente bajos como para asegurar predominio de los efectos capilares.

Los perfiles de saturación que obtienen, fig.13, presentan un claro comportamiento hiperdispersivo, puesto de manifiesto en el hecho de que observan que la saturación de agua crece, inmediatamente de comenzada la inyección. a todo lo largo del lecho.



Fig. 13. - Variación de la saturación de agua ( $\phi$ ) con el tiempo obtenida por Bacri y colab. [10] en experiencias de segunda imbibición.

Una estimación de la velocidad local C  $(S_m)$  les permite la resolución gráfica de la ecuación (4). As1, obtienen coeficientes de dispersión que disminuyen; a medida que la saturación de agua aumenta; desde valores muy altos a muy pequeños, comparados con los obtenidos en desplazamientos miscibles en iguales condiciones de flujo.

Realizando experiencias similares a distintos caudales observan que el grado de hiperdispersividad disminuye con el aumento del caudal [46], lo que indica que el fenómeno de hiperdispersión se produce solamente cuando los efectos

capilares son predominantes.

De acuerdo a la bibliografía consultada, estas experiencias son las únicas dedicadas enteramente a obtener los perfiles de saturación a caudales suficientemente bajos como para poner en evidencia la importancia de los efectos capilares.

Es por eso que aparece como significativo aportar mas datos experimentales en este campo. Las experiencias que se describen a continuación tienen ese objetivo. Se hace uso de una técnica que no sólo permite obtener los perfiles. sino que permite distinguir entre el agua residual de una primera imbibición y el agua inyectada durante una segunda imbibición [47].

Además, se estudian los perfiles resultantes de ambos procesos en lechos con dos tipos de estructura muy distinta y se determina el movimiento del agua residual. Por otra parte, se investiga también la influencia que tiene en los perfiles el haber saturado el lecho inicialmente con el líquido mas mojante o con el menos mojante.

# V.2. - Descripción de las Experiencias y Resultados

El objetivo de las experiencias que se describen a continuación es obtener perfiles de saturación en distintas condiciones de trabajo para extraer. a partir de su análisis, conclusiones acerca de la influencia de dichas condiciones en del desplazamiento. Los las caracter1sticas factores a considerar son: mojabilidad de los fluidos respecto de la matriz porosa, estructura del medio, orden en que los fluidos lo saturaron y cantidad de ciclos de invección que se realizan.

Para ello se realizaron experiencias con distinto orden de inyección de los fluidos, en los dos tipos de lechos, consolidados y no consolidados, descriptos en III.1.

En el parágrafo que sigue se estudia el desplazamiento en medios saturados inicialmente con el l1quido menos mojante (kerosene).

A continuación, se analizan las experiencias realizadas en lechos saturados inicialmente con el líguido mas mojante (agua),

para poner de manifiesto la influencia de una película residual de agua sobre las paredes de la matriz porosa.

Los resultados obtenidos en ambos tipos de experiencias se discuten e interpretan en el paragrafo 3.

V.2.1. - Lechos Saturados con el Fluido No Mojante

V.2.1.1. - Ciclos de Inyección

La secuencia seguida en estas experiencias es la siguiente: el lecho se satura totalmente con kerosene. A continuación se lo coloca en el banco de medición y se le inyecta, a diferencia de presión constante, agua marcada con el trazador radioactivo. Se trata de un proceso de primera imbibición. Se obtienen, con la técnica descripta en III.5.2, los perfiles de saturación de agua radioactiva.

En el transcurso de la experiencia se observa que el líquido efluente es exclusivamente kerosene durante todo el tiempo en que la actividad, es decir la saturación de agua marcada en el interior del lecho, crece. Cuando ésta llega a su valor máximo en la cara de salida, prácticamente cesa la producción de kerosene y comienza a salir agua marcada, por lo que la saturación de agua se estabiliza. Este hecho se conoce en la industria petrolera con el nombre de "breakthrough" o irrupción de agua [1,2].

El medio queda, entonces, saturado parcialmente con agua y con una saturación residual de kerosene que no es posible disminuir con el gradiente de presión utilizado en la experiencia.

De acuerdo a observaciones realizadas en modelos bidimensionales [37], esta fase residual queda atrapada en pequeñas islas desconectadas entre sí

Se realiza a continuación. una fase de drenaje, es decir, el medio se barre con kerosene que desplaza al agua marcada. Este proceso se comienza con el menor gradiente de presión para el cual se produce desplazamiento de líquido del interior del

medio. Tal como se vió en V.1.2, existe una presión umbral por debajo de la cual el líquido no mojante no entra en el lecho, debido a los efectos capilares.

En esta etapa de drenaje, el líquido efluente es inicialmente sólo agua. Pero, contrariamente a lo que ocurre en la primera imbibición, en el momento en que el kerosene llega a la cara de salida, hecho que se manifiesta en la dísminución de la actividad de dicha cara, comienza a salir del medio junto con el agua.

Durante largo tiempo se producen ambas fases, con una cantidad creciente de kerosene en el efluente. Por fin el agua cesa de emerger, quedando en gran cantidad en el interior del medio, distribuída no uniformemente. Las caras mas cercanas a la salida quedan con mucha mas actividad, mas agua, que las caras cercanas a la entrada. Similares resultados fueron obtenidos por Dullien [37] en trabajos realizados con modelos bidimensionales.

Se aumenta entonces el gradiente de presión, observándose que el proceso se repite. Con cada paso de aumento de presión se uniformiza la saturación de agua de las caras mas cercanas a la salida.

El proceso se dá por finalizado cuando todo el lecho queda con una saturación uniforme del 20 % de agua residual, que según lo observado en los trabajos de visualización mencionados previamente, habrá quedado distribuida en forma de islas conectadas entre sí por medio de una película o film continuo adherido a la totalidad de la superficie de la matriz sólida

Comienza luego la segunda etapa de imbibición o "segunda imbibición". Esta se realiza con el objetivo de estudiar la influencia del film residual de agua presente sobre las paredes, comparando los resultados con la primera imbibición, en la que dicho film no estaba presente.

Vuelve a inyectarse, a igual gradiente de presión que en la primera imbibición, agua marcada con el mismo trazador, de manera que la actividad medida es proporcional a la saturación total de agua presente en la zona: agua residual mas agua inyectada. Se registran los valores de actividad en función de

la posición y del tiempo.

Se observa nuevamente, que el líquido efluente es exclusivamente kerosene hasta que el medio llega a la saturación máxima de agua. En ese momento aparece agua en la salida y deja de producirse kerosene.

Esta diferencia sustancial en las características de la irrupción del fluido desplazante en los procesos de imbibición y drenaje, será analizado en detalle en el capítulo VI de la segunda parte de este trabajo.

## V.2.1.2. - Resultados Experimentales

Se presentan en paralelo los resultados obtenidos para los dos tipos de medios porosos utilizados, de tal manera de poner de manifiesto la influencia de las diferentes características estructurales de los mismos.

El gradiente de presión utilizado para todas los ciclos de inyección fue de 470  $N/m^2$  (4.8 cm de columna de agua) para el lecho de microesferas y de 4000  $N/m^2$  (41 cm de columna de agua) para la Berea. Con estas presiones se obtuvieron caudales en flujo monofásico de agua de 0,05 cm<sup>3</sup>/seg y 0,03 cm<sup>3</sup>/seg respectivamente y de 0.036 cm<sup>3</sup>/seg y 0,02 cm<sup>3</sup>/seg en flujo monofásico de kerosene, tal como se muestra en las curvas A y B de las figs. 14 y 15.

Como ya se ha dicho la permeabilidad del medio, en flujo bifásico es siempre menor que en flujo monofásico (fig.10), por lo que, de acuerdo a la Ley de Darcy generalizada, las velocidades durante la primera imbibición, y por consiguiente los números capilares, serán aún menores que las obtenidas en flujo monofásico.

# Primera Imbibición

En las curvas C de las figs. 14 y 15 se representa el volumen acumulado en función del tiempo durante la primera imbibición.



Fig. 14.- Volumen acumulado en función del tiempo para el lecho de microesferas. A: flujo monofásico de agua, B: flujo monofásico de kerosene, C: primera imbibición, D: segunda imbibición.



Fig. 15. - Volumen acumulado en función del tiempo para la Berea. A: flujo monofásico de agua, B: flujo monofásico de kerosene, C: primera imbibición, D: segunda imbibición.

Efectivamente. el caudal resultante es menor en ambos casos que el monofásico. El mismo varia levemente durante la experiencia. De cualquier manera los caudales máximos obtenidos durante ambas corridas fueron de 0.02 y 0.018 cm<sup>3</sup>/seg lo que implica números capilares máximos de  $10^{-6}$  asegurándose entonces, el predominio de los efectos capilares.

En la figs. 16 y 17 se grafican los perfiles de saturación obtenidos para cuatro posiciones diferentes de ambos lechos. correspondiendo las dos extremas a la entrada y salida de los medios. Las curvas muestran el progresivo reemplazo del kerosene por agua a medida que el frente avanza, observándose un tiempo de retardo en la aparición de agua en las diferentes caras proporcional a su distancia a la cara de entrada.

Tanto en las figuras 14 y 15 como en las 16 y 17 se ha marcado con una línea vertical el tiempo del "breakthrough" o de la irrupción a la salida de la primera gota de agua. Se ve que este tiempo coincide aproximadamente con el tiempo en que la saturación de agua en la cara de salida ha alcanzado su máximo valor. No corresponde, como se hubiera esperado. al tiempo en el cual el agua ha llegado a esa cara (≃ 85 У 80 min respectivamente). Este resultado, ya comentado en la descripción de los ciclos de inyección, es una consecuencia de la mayor afinidad del agua a la matriz porosa y será analizado con detalle en el capítulo VI de la segunda parte de este trabajo.

También se observa en los perfiles de saturación que, una vez producida la irrupción de agua, la saturación del lecho no varía, lo que indica que todo el agua inyectada emerge del medio sin desplazar mas kerosene.

Quedan así los lechos con una saturación residual de kerosene del 20 % y 40% respectivamente. Esta diferencia se debe a la mas intrincada geometría de la Berea que impide un barrido mas eficiente.



Fig. 16.- Saturación de agua en función del tiempo en cuatro caras del lecho de microesferas durante una primera imbibición.



Fig. 17.- Saturación de agua en función del tiempo en cuatro caras de la Berea durante una primera imbibición.

### Drenaje

En la descripción de los ciclos de inyección se han dado las principales características experimentales observadas en esta etapa. Estas pueden verificarse en la fig. 18 donde se muestran los perfiles de saturación correspondientes a 3 caras del lecho de microesferas.





El proceso se comenzo con el lecho totalmente saturado de agua marcada y se inyecto ciclohexano a una presión de 600  $N/m^2$ . En la figura se ve que, a dicha presión, la saturación de agua de la cara de entrada disminuye rápidamente desde el 100 % hasta

el 50 %. En cambio, las saturaciones de las caras mas cercanas a la salida disminuyen, a esa misma presión, mucho menos: la correspondiente a 20 cm sólo lo hace a un valor cercano al 95 %. La cara de salida recién comienza a disminuir su saturación a los 2500 min de comenzado el proceso, indicando que el ciclohehano inyectado ha llegado a esa cara desplazando agua marcada. Es a ese mismo tiempo que se observa que el ciclohexano emerge del medio conjuntamente con el agua desplazada.

A partir de ese momento y hasta los 5500 min. la saturación de la cara de entrada dismínuye mucho mas lentamente hasta permanecer prácticamente constante. Este hecho se corresponde con lo observado en los líquidos efluentes: dismínución paulatina de la proporción de agua y aumento de la de ciclohexano hasta que sólo emerge el ciclohexano inyectado.

Se hace necesario. entonces, aumentar la presión de inyección para continuar con el proceso de expulsión de agua del interior del medio. La misma se lleva a 800 N/m<sup>2</sup>. Se ve que esto produce una brusca disminución de la saturación de la cara de entrada. del 45 % al 20 % y de la cara ubicada a 20 cm, del 95% al 75 %.

Al cabo de los 9000 min, se estabiliza nuevamente la saturación de esta última cara y de todo el medio, coincidiendo nuevamente con el hecho de que sólo emerge del mismo ciclohexano inyectado.

Se aumenta nuevamente la presión a  $1000 \text{ N/m}^2$ , a dicho tiempo. a  $1200 \text{ N/m}^2$  a los 11500 min y a  $1400 \text{ N/m}^2$  a los 18500 min. Con estos sucesivos aumentos de presión se logra que el medio quede con una saturación uniforme de agua del 20 %, observándose en todos los casos la repetición de las características descriptas.

Idéntico proceso se realizó con la Berea, con la diferencia de que fue necesario aplicar presiones comparativamente mas altas para llegar a igual saturación final. Los perfiles obtenidos resultaron totalmente análogos a los mostrados en la fig. 18.

# Segunda Imbibición

En esta etapa se realizo una segunda imbibición; se inyectó agua marcada con el mismo trazador y a las mismas presiones que en la primera imbibición.

En las figs. 14 y 15. curvas D. se muestra la variación del volumen acumulado con el tiempo. El caudal resultante es menor que en la primera imbibición para ambos medios, pero en la Berea la diferencia con el caudal de la primera imbibición es mucho mayor.

También se ve en las riguras, que el caudal permanece prácticamente constante en el primer caso y disminuye levemente en el otro.

En las figs. 19 y 20 se muestran los perfiles de saturación obtenidos. Las curvas son cualitativamente similares a las de la primera imbibición, aunque parten de un valor de saturación de 0,2 correspondiente a la saturación residual de agua al finalizar el drenaje.

También en este caso, se observa que la irrupción de agua se produce sólo despues de que la saturación de agua ha alcanzado su valor máximo en todo el lecho incluída la cara de salida.

Las diferencias sustanciales entre los perfiles obtenidos para el lecho de microesferas y para la Berea son los tiempos de saturación de cada cara. compatibles, por supuesto, con los respectivos caudales resultantes. La irrupción de agua se produjo a los 75 min en el lecho y a los 220 min en la Berea.

## Segunda Imbibición con el Agua Residual sin Trazador

objetivo de estudiar el movimiento del Con el agua experiencia complementaria, residual. se realizo una en imbibición antes condiciones identicas a la de la segunda descripta, pero con el agua residual sin trazador. La misma se realizo en el medio poroso consolidado (Berea).



Fig. 19.- Saturación de agua en función del tiempo en cuatro caras del lecho de microesferas durante una segunda imbibición.



Fig. 20.- Saturación de agua en función del tiempo en cuatro caras de la Berea durante una segunda imbibición.

En este caso los ciclos de inyección fueron: saturación con kerosene, imbibición con agua sin trazador radioactivo. drenaje con kerosene y segunda imbibición con agua marcada. De este modo, la actividad medida es solo proporcional a la saturación de agua inyectada y no incluye la saturación de agua residual.

Los perfiles resultantes se muestran en la fig. 21. Se observa que tienen un aspecto totalmente diferente a los de la fig. 20. Comienzan en cero y los tiempos en que el agua marcada aparece en cada cara son mayores que los de la fig. 20. Esta diferencia de tiempo aumenta con la posición de la cara. Ademas la irrupción de agua se produce cuando la posición 20 no ha sido totalmente saturada y la cara de salida esta saturada solo en un 20 %.



Fig. 21.- Saturación de agua inyectada en función del tiempo en cuatro caras de la Berea durante una segunda imbibición.

Estos resultados indican que el agua residual no permanece inmóvil en su totalidad sino que, al menos en parte, es reemplazada inmediatamente por el agua de inyección.

Efectivamente, del análisis de los perfiles surge que el agua de inyección desplaza al agua residual de las primeras caras. A su vez, esa agua residual desplazada, desplaza kerosene de las caras siguientes.

Este crecimiento de la saturación de agua en dichas caras no se detecta ya que el agua residual no está marcada. Por consiguiente, que el perfil de una determinada cara comience a subir, significa que el agua de inyección ha llegado a esa cara, y no que recién a ese tiempo haya llegado agua.

Por ese motivo los tiempos en los que en cada cara comienza a detectarse agua son mayores que en la experiencia descripta por la fig. 20. En el caso de la fig. 20, se detecta toda el agua presente: residual mas inyectada.

Precisamente. la diferencia entre cada perfil de la fig. 20 y su correspondiente en la fig. 21 es la saturación de agua residual.

Así, debe entenderse que, al momento de la irrupción de agua, la cara de salida contiene un 15 % de agua marcada, 50 % de agua residual sin marcar y el 35 % restante de kerosene residual.

Este movimiento del agua residual se estudia con mas detalle en la experiencia que se describe en el siguiente parágrafo.

# V.2.2. - Lechos Saturados con el Fluido Mojante

El objetivo de esta experiencia fue investigar como la historia de los sucesivos desplazamientos, es decir el orden en que los fluidos mojantes y no mojantes saturaron el medio, influye sobre los perfiles de saturación resultantes.

Simultaneamente se quisieron verificar las observaciones realizadas en la experiencia descripta en el punto anterior, respecto del movimiento del agua residual.

Para ello se trabajó con un lecho no consolidado de las mismas características que el ya descripto. Para la inyección se usó la bomba de caudal constante, con el fin de evitar que el cambio de caudal resultante en las experiencias realizadas a diferencia de presión constante, enmascare los resultados.

Se utilizó ciclohexano como fluido no mojante, ya que al tener la misma viscosidad que el agua. se anula la posibilidad de que se produzca el fenómeno de digitación viscosa [24] durante la imbibición. deformando los perfiles obtenidos.

Para observar con claridad el movimiento del agua residual se marcó el agua con dos trazadores, tal como se explica en el punto siguiente.

## V.2.2.1. - Ciclos de Inyección

Se saturó inicialmente el lecho con el líquido mas mojante (agua). A continuación se realizó un desplazamiento miscible con agua marcada con iodo, obteniéndose perfiles similares a los mostrados en la fig. 7., verificandose de este modo la homogeneidad del lecho.

Una vez saturado el medio con agua marcada se procedió a realizar el drenaje con ciclohexano en condiciones similares a las descriptas en el punto anterior. El lecho guedo con una saturación residual de agua marcada, uniforme, del 20 %.

Posteriormente se inyecto, a caudal constante, agua marcada con dos trazadores: iodo 131 y tecnecio 99, también emisor gamma pero de distinta energía que el iodo (ver par.III.4).

De esta manera se obtuvieron simultaneamente dos conjuntos de perfiles. Uno, en el que se registra la actividad de iodo, da cuenta del crecimiento en cada cara de la saturación total de agua: agua residual mas agua "nueva" y es comparable al mostrado en la fig. 16.

El otro, en el que se registra la actividad del tecnecio, muestra sólo el crecimiento de la saturación del agua "nueva" o inyectada durante la segunda imbibicion.

En esta forma, se obtienen en la misma experiencia, los

perfiles equivalentes a los mostrados en las figs. 19 y 21, es decir la información completa sobre el movimiento de los dos tipos de agua presentes en el medio y se puede deducir de los mismos sus desplazamientos relativos.

También en esta experiencia se observó que al momento de irrupción del agua, dejaba de producirse ciclohexano.

V.2.2.2. - Resultados Experimentales

El caudal de inyección utilizado fue de 0,008 cm<sup>3</sup>/seg, lo que asegura un número capilar del orden de 10<sup>-7</sup>.



Fig. 22.- Saturación de agua en función del tiempo en tres caras del lecho de microesferas durante una segunda imbibición. Perfiles correspondientes al Iodo.

En la fig. 22 se muestran los perfiles obtenidos para el iodo, es decir que las curvas representan la saturación total de agua en el interior del lecho. Se han representado tres posiciones, igual que en el caso anterior. dos extremas y una central.

Se observa que la saturación comienza en una línea de base correspondiente al 20 %, debido a la presencia de agua residual marcada y va creciendo en todas las caras ordenadamente hasta llegar a una saturación final cercana al 85 %.

La irrupción de agua, marcada en la figura con una línea vertical, se produce aproximadamente cuando la cara de salida está totalmente saturada.

En la fig. 23 se representan los perfiles obtenidos para el tecnecio: saturación de agua inyectada. Como se ve, los perfiles nacen de cero. la aparición de agua en cada cara se retrasa respecto de los perfiles anteriores y su pendiente es mucho menor. llegando la saturación de agua inyectada sólo al 50 %.

Esto indica que parte del agua residual es la que se mueve inicialmente hacia adelante. desplazada por la inyectada, al igual que el ciclohexano.

Sin embargo no toda el agua residual es reemplazada por la inyectada, ya que aún a tiempos largos, las caras iniciales contienen un 55 % de agua inyectada, 30 % de agua residual y 15 % de ciclohexano.

En la cara de salida se observa que, al momento de la irrupción de agua, sólo un 30 % corresponde a agua inyectada y que posteriormente a este, cuando el ciclohexano ha dejado de producirse, este porcentaje aumenta. Este resultado muestra que, en esa cara, el agua residual va siendo reemplazada por agua inyectada, una vez que ha sido desplazado de la misma todo el ciclohexano posible.

La disminución en la pendiente de los perfiles indica que el proceso de reemplazo de agua residual por agua de inyección se realiza mas lentamente que el de reemplazo del ciclohexano por agua.



Fig. 23.- Saturación de agua inyectada en función del tiempo en tres caras del lecho de microesferas durante una segunda imbibición. Perfiles correspondientes al tecnecio.

#### V.3. - Discusión de los Resultados

V.3.1. - Caudales

En primer lugar se discutiran los resultados obtenidos para los caudales, durante las experiencias realizadas a presión constante, ya que los mismos. de acuerdo a la ley de Darcy generalizada, ec. (3), brindan información sobre la variación de las permeabilidades relativas a ambos fluidos.

\* Durante la primera imbibición se obtuvieron, para ambos tipos de lecho, caudales menores que los correspondientes a flujo monofásico, aún considerando el fluido mas viscoso (figs. 14 y 15). Esto refleja que la permeabilidad total del medio, suma de la permeabilidad a cada uno de los fluidos. es menor que la permeabilidad absoluta, en concordancia con los resultados previos mostrados en la fig. 10.

Nótese que en las figs. 14 y 15. las curvas C deben compararse con las curvas B a tiempos cortos (mayoritariamente flujo de kerosene) y con las A a tiempos largos (flujo mayoritario de agua). Se ve que los caudales obtenidos son prácticamente la mitad que los obtenidos en el flujo monofásico correspondiente, indicando que importantes zonas de fluido quedan sin participar en el flujo. Parte de ese fluido que inicialmente queda inmovilizado, comenzará a movilizarse mas tarde o quedará como fase residual.

A pesar de que, según lo establecido experimentalmente por numerosos investigadores (fig.10), la permeabilidad en flujo bifásico disminuye inicialmente y luego aumenta, ésto no se ve reflejado en los caudales totales obtenidos en las experiencias realizadas. Tanto en el caso del lecho de microesferas como en el de la Berea, los caudales permanecen prácticamente constantes, con una leve tendencia creciente.

Ello puede explicarse si se tiene en cuenta que el líquido inyectado (agua) es de menor viscosidad que el que inicialmente saturaba el lecho (kerosene). Esto hace que la viscosidad media del fluido en el interior del lecho disminuya a medida que la

saturación de agua aumenta. compensandose, de esta manera, la disminución de la permeabilidad en la primera parte del desplazamiento y sumándose al aumento de la misma en la segunda.

\* En cuanto a la segunda imbibición, se obtuvieron caudales menores que en la primera en ambos tipos de lechos, pero esta diferencia es mucho mayor en la Berea.

Que el caudal resulte menor es explicable en base a que la permeabilidad total del medio disminuye aun mas en una segunda imbibición debido a la presencia del agua residual. la que. como se vio en el paragrafo anterior, no participa en su totalidad en el flujo.

La gran diferencia observada entre los caudales obtenidos durante la primera y la segunda imbibición en la Berea. con diferencia observada comparada la para el lecho de microesferas pone de manifiesto la influencia de la estructura del medio poroso.

El lecho de microesferas tiene una distribución de diámetros de poros mucho mas angosta que la Berea (11) y una mejor conectividad entre los mismos. Esto hace que el agua residual, en caso de quedar distribuida en islas. lo haga en poros o conjuntos de poros de tamaños comparables a los que ocupa el kerosene.

En cambio la Berea presenta una distribución de tamaños de poros mas amplia (11) y esto. como se vió en el parágrafo V.1.1. trae como consecuencia que. al finalizar el drenaje. los poros mas grandes queden ocupados por kerosene. lo que se traduce en una disminución considerable de la permeabilidad del medio al agua. durante la segunda imbibición.

La leve disminución de caudal durante la segunda imbibición en la Berea puede explicarse suponiendo que la disminución de la permeabilidad del medio influye mas que la disminución de la viscosidad media del fluido en su interior.

En el caso del lecho de microesferas en cambio. el caudal prácticamente constante obtenido parece indicar que. al igual que en la primera imbibición. los efectos de variación de la permeabilidad del medio se compensan con la variación de

viscosidad.

Estas suposiciones se refuerzan a partir del anàlisis de los perfiles de saturación que se hace a continuación.

## V.3.2. - Perfiles de Saturación

Conocer como varía con el tiempo la distribución de agua en el interior del medio poroso, brinda abundante informacion sobre las características del desplazamiento.

\* Un primer hecho a destacar es que permite conocer la saturación final alcanzada por el medio en cada una de las caras estudiadas y de esta forma comprobar si la misma es o no uniforme.

obtenidos durante las experiencias En los perfiles descriptas se ve que, en todos los casos. la saturación final de agua es uniforme a todo lo largo del medio. Sin embargo, su valor no es el mismo para ambos lechos. Mientras el de microesferas llega al 80 %, la Berea sólo alcanza el 65 %. Este resultado indica que el primero presenta una mejor conectividad de sus espacios huecos. lo que permite al aqua desplazar mayor cantidad de kerosene.

\* Respecto de los tiempos en que nacen los perfiles correspondientes a las distinta caras, ya se ha señalado que éstas se van saturando ordenadamente. No se observa en ningún caso una dispersión anormal o hiperdispersión como la descripta por Bacri y colaboradores [10], en el sentido de que todas las caras del medio comiencen a aumentar su saturación de agua inmediatamente o poco después de iniciarse la experiencia. Por el contrario, es claramente visible que existe un tiempo de retardo considerable entre la llegada del agua a las primeras caras y a las últimas.

\* En el caso de la Berea. si se verifica que los perfiles son menos empinados en la segunda imbibición que en la primera. Es decir que el tiempo que transcurre desde que una cara comienza a cambiar su saturación hasta que esta llega al valor máximo, es mayor, comparado con el tiempo total de la corrida.
en la segunda imbibición que en la primera.

También, en la segunda imbibición de la Berea, se ve que la longitud de lecho en la cual se están produciendo cambios de saturación simultáneamente. es decir, la longitud de la zona de mezcla, es mayor que en la primera imbibición. Obsérvese en la fig. 20, que al 30% del tiempo total de la corrida. la zona de mezcla abarca 20 cm. del lecho. mientras que la fig. 17 muestra que, al mismo tiempo relativo. dicha zona abarca solo 10 cm del lecho.

Esto indica que, para la Berea, el coeficiente de dispersión efectivo en una segunda imbibición es mayor que en una primera imbibición.

También es mayor, en este caso, el tiempo transcurrido hasta la irrupción de agua en la segunda imbibición que en la primera, lo que, como ya se ha dicho, es debido a la muy baja permeabilidad que presenta el medio en estas condiciones de trabajo.

\* En cambio en el lecho de microesferas, a causa de su mejor conectividad. la saturación residual de agua prácticamente no cambia su permeabilidad. lo que se traduce en caudales similares durante la primera y la segunda imbibición. Este hecho redunda en que los perfiles también son similares, notándose como única diferencia que el tiempo de la corrida, hasta la irrupción de agua, es menor debido a que se comienza la misma con un 20% de agua.

En particular, no se observa en estos perfiles que cambie el tiempo relativo de saturación de cada cara, respecto de la primera imbibición, ni tampoco que cambie la longitud de la zona de mezcla. Es decir que el coeficiente de dispersión efectivo de ambos procesos es similar.

\* Estos resultados diferentes: coeficientes de dispersión distintos en la Berea e iguales en el lecho de microesferas, podrían indicar que el agua residual, aunque ocupando la misma fracción del volumen total (20%), está distribuída de manera diferente en ambos lechos: sólo como película continua adherida a las paredes en el caso de las microesferas y como película e

islas en el caso de la Berea.

Esta última distribución explicaria, por un lado, la permeabilidad 🐃 en la segunda sensible disminución de la imbibición de la Berea. Al no existir succión capilar, las islas de agua residual actuarían como obstáculos en el camino del agua inyectada. dejando como caminos preferenciales para la circulación aquellos canales y poros que tienen una película de agua en la superficie y kerosene en el interior.

También, podria explicar el aumento de la longitud de la zona de mezcla, si se considera que el agua inyectada reemplaza en primer lugar, el agua residual y el kerosene ubicados en el interior de algunos canales, los que no forman parte de las islas. Consecuentemente, reemplazaria con escasa diferencia de tiempo, parte del kerosene presente en caras alejadas de la muestra. Esto, agranda la zona en la que se están produciendo cambios de saturación o zona de mezcla.

Sin embargo, el hecho de que cada cara tarde mas en saturarse que en una primera imbibición, parece indicar que no todos los canales con kerosene de una misma cara son invadidos simultáneamente por el agua de inyección. Sino que, por el contrario, el agua inyectada desplaza al agua residual y al kerosene de algunos canales y poros conectados a lo largo de parte de la muestra, para después hacer lo mismo con otro conjunto de canales y poros de la misma zona de la muestra. En definitiva, el agua de inyección no se "consumiría" en desplazar todo el kerosene de una cara, sino en desplazar poco kerosene de muchas caras.

Este proceso explica los tres resultados obtenidos en la segunda imbibición de la Berea: disminución sensible de la permeabilidad, aumento de la longitud de la zona de mezcla y aumento del tiempo de saturación de cada cara.

\* El mismo razonamiento puede aplicarse a los resultados obtenidos por Bacri y colaboradores (fig.13). En ese caso, la hiperdispersión observada no sería mas que una extensión del mismo proceso a toda la longitud de la muestra. El agua inyectada se consumiría integramente, en una primera etapa, en

desplazar, del interior de unos pocos canales pero todo a lo largo del lecho, agua residual hacia adelante y kerosene hacia el exterior. Esto significa que la longitud de la zona de mezcla coincide con la longitud del lecho, produciendo el aumento casi inmediato de la saturación de agua (residual o inyectada) en todas las caras, que es lo que se observa en los perfiles de Bacri y colab.

Otra característica importante de los perfiles obtenidos por Bacri es que el tiempo de saturacion de cada cara no es constante. como si lo es en las experiencias aqui presentadas. sino que aumenta notablemente con la distancia de la cara estudiada a la cara de entrada. Es decir, los perfiles no son paralelos entre sí.

Este resultado puede ser una consecuencia de lo anterior. Si la zona de mezcla se extiende a toda la muestra, es razonable suponer que la densidad de canales ocupados por el agua de inyección, en sucesivas etapas del desplazamiento, sea mayor cuanto mas cerca esté la cara estudiada del punto de inyección. Esto se traduce en que las caras mas cercanas a la entrada insumen menos tiempo en saturarse que las mas cercanas a la salida.

La diferencia entre los resultados de Bacri y los presentados aquí, sería, entonces. sólo cuantitativa y debida, probablemente, a la distinta mojabilidad respecto de la matriz sólida de los fluidos empleados o a los menores caudales utilizados por Bacri. Ambas variables, sobre todo el caudal. como se verá en la segunda parte de este trabajo, modifican los efectos capilares presentes en los poros y pueden aumentar el fenómeno descripto.

V.3.3. - Efecto del Orden de las Saturaciones

De lo expuesto hasta aquí, surge la importancia de que se esté estudiando un proceso de primera o de segunda imbibición. La forma en que queda distribuida el agua residual puede cambiar sustancialmente las características del desplazamiento.

Sin embargo, se ha visto que estos cambios sólo se producen en el lecho consolidado. Debido a su distinta estructura geométrica: distribución de tamaños de poros mas amplia y menor conectividad de los mismos, el agua residual parece distribuirse en distinta manera que en el lecho no consolidado en el que no se observaron mayores diferencias entre uno y otro proceso.

Al respecto, resulta útil constatar que los resultados de la última experiencia descripta: segunda imbibición en un lecho no consolidado saturado inicialmente con el líquido mas mojante (agua), agregan nuevos elementos a esta discusión.

Efectivamente, de la comparación de las figs. 19 y 22. correspondientes a segundas imbibiciones en lecho de microesferas. surge que el hecho de haber saturado el medio inicialmente con el fluido mas mojante (fig. 22), se traduce. al igual que en el caso ya analizado de la Berea. en perfiles menos empinados: mayor tiempo de saturación de cada cara y en una zona de mezcla mas grande: mayor longitud de lecho cambiando de saturación simultaneamente.

Debe tenerse en cuenta que en los dos casos hay agua residual presente, sin embargo los perfiles muestran las diferencias señaladas.

Estos resultados pueden explicarse teniendo en cuenta que el haber cambiado el orden de las saturaciones. conduce a un cambio en la mojabilidad relativa de los fluidos a la matriz sólida.

Es sabido que algunos sólidos interactúan con el fluido con el que se los pone en contacto, cambiando sus propiedades de mojabilidad [48]. En general el sólido aumenta su afinidad con el líquido con el que primero se lo puso en contacto.

En la segunda parte de este trabajo se describe lo que ocurre con el vidrio de boro-silicato, que cambia tanto sus propiedades, que resulta imposible realizar en un tubo de este material, una experiencia de primera imbibición utilizando kerosene y agua como fluidos. Una vez saturado el tubo con kerosene, este se transforma en mas mojante al vidrio que el agua y por lo tanto, lo que debió ser una imbibición se

convierte en un drenaje.

Si se admite que esto sucede también en el lecho de microesferas. y que por lo tanto al saturar el lecho inicialmente con agua, se aumenta la afinidad del vidrio con ella, puede inferirse que los efectos capilares son mayores.

Esto hace que, durante el drenaje, el kerosene no pueda penetrar en zonas enteras, con accesos de diámetro pequeño por ejemplo, debido a que la presión no es ahora suficiente para vencer la mayor presión capilar adversa y de esa forma, estas zonas queden rodeadas por canales que contienen agua en las paredes y kerosene en el interior [49].

La distribución final del agua residual será, entonces, en forma de islas conectadas por medio de una película. con las consecuencias mencionadas en el punto anterior.

Esta interpretación explica porque Bacri y colaboradores observan el efecto hiperdispersivo en un lecho de microesferas, ya que en su caso el medio fue saturado inicialmente con agua [45].

## V.3.4. - Movimiento del Agua Residual

Las experiencias descriptas en la última parte del punto 2.1 y en el punto 2.2, brindan información sobre el movimiento del agua residual.

Ya se ha hecho referencia a que la técnica desarrollada en este trabajo tiene como ventaja frente a otras, el que permite detectar en forma independiente y simultánea la presencia de líquidos de características físicas y químicas iguales. En este caso, se hace uso de dicha ventaja para estudiar el desplazamiento del agua residual de una primera imbibición y diferenciarlo del movimiento del agua inyectada durante la segunda imbibición.

Este estudio se ha realizado mediante dos experiencias que brindan información complementaria. En la primera, el agua residual no contiene trazador y sí lo tiene el agua inyectada durante la segunda imbibición. Los perfiles así obtenidos se

comparan con aquellos en los que toda el agua, residual mas invectada. contienen trazador.

En la segunda experiencia, el agua inyectada en la segunda imbibición contiene dos trazadores, mientras que el agua residual sólo tiene uno de ellos. En este caso, se obtienen simultáneamente dos conjuntos de perfiles de cuya comparación se deduce el movimiento de los dos tipos de agua.

El resultado mas importante de estas experiencias es que el agua residual no permanece inmovil durante la segunda imbibición, sino que, en parte, es desplazada por el agua de inyección junto con el fluido no mojante.

Los perfiles mostrados en la fig. 23. que representan la saturación de agua inyectada, indican que una vez desplazado todo el ciclohexano posible de cada cara, el proceso de reemplazo del agua residual por agua inyectada, en esa cara, se hace mucho mas lento.

Este resultado es razonable si se tiene en cuenta que en esta etapa del desplazamiento, puede considerarse que los efectos capilares no están presentes, o al menos, que su influencia es mucho menor. El fluido no mojante residual ha quedado atrapado en forma de islas y el agua de inyección sólo circula por canales saturados por agua restante de la primera imbibición. El proceso puede entenderse, entonces, como un desplazamiento miscible.

Al momento de la irrupción de agua, la proporción de agua residual es creciente hacia la salida y la del agua inyectada es decreciente, siendo su suma constante.

En la bibliografía consultada no se han encontrado referencias acerca de otros resultados experimentales sobre el movimiento relativo del agua residual y del agua de inyección, por lo que los agui presentados constituyen un primer aporte al tema (21.47).

## V.3.5. - Irrupción del Fluido Desplazante

En los puntos 2.1 y 2.2 se ha hecho mención a las distintas

características observadas en la irrupción del líquido desplazante en imbibiciones y drenajes. En un drenaje el no mojante emerge inmediatamente después de haber llegado a la cara de salida, aún cuando la saturación de ese fluido no halla llegado a su valor máximo.

En una imbibición, por el contrario. el fluido mojante no emerge del medio en el momento de llegar a la cara de salida sino que lo hace después de haberlo saturado totalmente.

Este punto se discutirá en detalle en la segunda parte de este trabajo con ayuda de un modelo experimental simplificado.

### VI. - CONCLUSIONES

En esta parte del trabajo se han mostrado los resultados de las experiencias realizadas con medios porosos consolidados y no consolidados. Se describió la técnica experimental, los dispositivos que fue necesario diseñar y construir y los métodos utilizados para determinar los parametros característicos de los medios porosos utilizados.

Se analizaron los resultados de las experiencias llevadas a cabo y se los comparo con los antecedentes bibliográficos consultados.

Las conclusiones más importantes que pueden extraerse de lo expuesto son:

- La técnica experimental utilizada, determinación de saturaciones locales mediante el uso de trazadores radiactivos. demostró ser eficiente y precisa para el análisis de desplazamientos de fluidos inmiscibles en el interior de medios porosos.

- Los dispositivos adicionales diseñados y construídos: compactador de lechos y bomba de caudal constante. cumplieron sus funciones adecuadamente en las experiencias descriptas en este trabajo y quedaron como equipamiento permanente del laboratorio.

- Los resultados obtenidos y su discusión posterior ponen de manifiesto la importancia de los siguientes factores:

a) mojabilidad de los fluidos respecto de la matriz porosa.

- b) velocidad de flujo,
- c) secuencia de las sucesivas inyecciones,
- d) cantidad de ciclos que se realizan,
- e) geometría, estructura y material del medio poroso.

- A pesar de que las experiencias descriptas han permitido extraer información acerca de la influencia cualitativa de cada uno de estos factores. la variedad de los mismos. su interrelación. la carencia de una teoría unificadora que permita el planteamiento y solución analítica del problema. ponen de manifiesto la necesidad de investigar uno a uno los factores

intervinientes en modelos de laboratorio mas simples, donde se pueda investigar uno de ellos de manera independiente, controlando los demás.

Precisamente. la segunda parte de este trabajo está dirigida a esclarecer uno de esos puntos. Se estudia experimentalmente el comportamiento de la presión capilar en modelos de geometría simple. superficies controlables y mojabilidad constante.

## ANEXO I

## EQUIPO COMPACTADOR DE MEDIOS POROSOS

Las experiencias en medios porosos no consolidados utilizando fluidos marcados con trazadores radioactivos. hacen necesario, una vez concluídas las mismas. desarmar el medio y almacenar las microesferas y el líquido residual para permitir su desactivación.

Por este motivo, para cada experiencia se construye un medio poroso nuevo. Es imprescindible, entonces, contar con un método de compactación de las microesferas en el interior del cilindro de acrílico usado como contenedor que asegure lechos no estratificados y repetitividad en el valor de la porosidad. Es conveniente ademas, que el proceso de preparación insuma un tiempo lo mas corto posible.

Para ello se diseño y construyo un equipo que reune las tres condiciones. El principio de funcionamiento del mismo es tal que las microesferas caen dentro del tubo contenedor distribuidas uniformemente y desde una altura constante respecto de la superficie libre. Esto asegura que, en valor medio, las microesferas llegan a la superficie libre con igual energía cinética, independientemente del grado de llenado del tubo, con lo que la compactación se mantiene uniforme [22].

El equipo, esquematizado en la fig. 1, consta de tres partes: suministro de microesferas. distribuidor de las mismas y sistema de giro-descenso del lecho.

El suministro de microesferas, a caudal másico constante y regulable, se realiza mediante una tolva (a) montada sobre un vibrador electromagnético (b). La frecuencia de vibración, variable con la tensión aplicada, determina el caudal másico que suministra la tolva.

El sistema de distribución está ubicado en el interior de un tubo de acetato (c) de igual diametro externo que el interno del tubo de acrílico y de la misma longitud.



Fig. 1. - Esquema del equipo compactador de medios porosos.

Las microesferas pasan primero por un embudo (d), con una grilla en su extremo y luego por un apilamiento de esferas metálicas (e) de 5 mm de diámetro que las distribuye aleatoriamente. A continuación se dispone un conjunto de tubos paralelos (f) de 3 mm de diámetro y longitud suficiente para llegar hasta el extremo final del tubo de acetato. La función de estos tubos es mantener la distribución aleatoria de las microesferas hasta que llegan a la superficie libre.

El sistema de distribución se introduce completamente en el tubo de acrílico (g) y se fija al sistema de suministro. Al iniciarse el flujo de microesferas, el tubo de acrílico comienza a girar y a descender con una velocidad igual a la de avance de la superficie libre.

El giro y descenso del medio se logra sujetándolo al extremo de un tornillo (h) que pasa por una tuerca (i) fija a un soporte (j). El tornillo gira impulsado por un motor de velocidad regulable (k).

La velocidad de giro del tornillo, que determina la velocidad de descenso del medio, se regula de acuerdo al caudal de microesferas utilizado, de manera tal que la superficie libre de microesferas permanezca a una distancia constante ( $\simeq$  45 cm) del punto de caída de las mismas.

La porosidad se calcula por diferencia de peso con el medio vacío. Esta medida se realiza a distintas alturas de llenado para asegurarse de que sea uniforme a lo largo del lecho.

Se ensayaron distintos caudales encontrandose que los mejores resultados se obtenían para caudales comprendidos entre 4 y 14 gr/min. La porosidad resultante a estos caudales es de  $0.32 \pm 0.005$ .

Este valor es inferior en un 10 % al valor logrado con el método de compactación mediante vibraciones del lecho. El mismo consiste en verter en el tubo contenedor una pequeña cantidad de microesferas y someter el lecho a vibraciones. Esto hace que las microesferas se compacten lo que se pone de manifiesto en la disminución de la altura de la superficie libre. Se continua con las vibraciones hasta que se observa que dicha altura permanece

constante. se agrega una cantidad similar de microesferas y se repite el proceso .

Este método provoca estratificación de las microesferas por tamaño: las mas pequeñas quedan en la parte inferior y el proceso de compactación de un medio de 40 cm es de 24 hs. mientras que con el metodo desarrollado en este trabajo se evita la estratificación y el tiempo que requiere el llenado del mismo lecho es de 2 hs.

## ANEXO II

## BOMBA DE CAUDAL CONSTANTE

La bomba de caudal constante fue diseñada para satisfacer las necesidades de las experiencias de desplazamientos de fluidos inmiscibles en medios porosos.

Estas son: caudal constante no pulsante a contrapresión variable, capacidad de 1000 cm<sup>9</sup>, caudal regulable con valores menores que 2 cm<sup>9</sup>/min para asegurar el predominio de los efectos capilares y posibilidad de trabajar con fluidos marcados con trazadores radiactivos sin contaminar la bomba.

En la fig. 1 se muestra un esquema de la bomba. El cuerpo de la misma (a) es un cilindro de acrílico transparente de 7 cm de diámetro y 42 cm de longitud. cerrado en un extremo por un disco de acrílico que tiene su cara interior torneada en forma de cono, para evitar la acumulación de aire.



Fig. 1. - Esquema de la bomba de caudal constante.

El pistón (b) esta constituído por dos piezas, tuerca (c) y émbolo (d). unidas por tres varillas de bronce. La tuerca, avanza o retrocede sobre un tornillo sinfín (e) que gira sobre rulemanes autocentrantes (f). impulsado por un micromotor (g) de corriente continua y velocidad variable con la tensión aplicada.

El émbolo está compuesto por discos alternados de teflon y acrílico. tres de acrílico que presionan entre sí a dos de teflon que, de esa manera. funcionan de sellos.

El cuerpo de la bomba y los rulemanes están montados sobre bases independientes regulables en altura. lo que permite la alineación del sistema

El cuerpo de la bomba se llena con aceite y la salida se conecta a un recipiente estanco. ubicado en el interior de un castillo de plomo, totalmente lleno con el agua radioactiva. Al poner en marcha el motor. el aceite desplaza el agua hacia el medio poroso.

Se calibro la bomba utilizando como fuente de contrapresión variable la columna de liquido expulsado por la misma, variando ésta durante la corrida entre 0 y 60 cm de altura.



Fig. 2. - Volumen acumulado en función del tiempo.

Se obtuvieron. valores constantes de caudal para cada velocidad de giro del motor (tension de alimentacion entre 4 y 10 volts). Esto puede verse en la fig. 2, en la que se grafica el volumen acumulado en funcion del tiempo para 6 tensiones distintas.

En la fig. 3 se muestra la variacion del caudal con la tensión de alimentación del motor. Se ve que los datos experimentales se ajustan bien con una recta indicando la linealidad de la respuesta dentro del rango de tensiones admitido por el motor utilizado.



Fig. 3.- Curva de calibración de la bomba de caudal constante.

El caudal mínimo que entrega la bomba en las condiciones descriptas es: 0,46  $\pm$  0,003 cm<sup>9</sup>/min y el máximo: 1.69  $\pm$  0,002 cm<sup>9</sup>/min.

Estos valores satisfacen los requerimientos de las experiencias en medios porosos. Sin embargo, el valor máximo puede aumentarse utilizando un tornillo de paso mas grande y el valor mínimo disminuirse poniendo una reducción a la salida del motor.

## REFERENCIAS

Mungan, N.: Enhanced oil recovery using water as a driving fluid: Interfacial phenomena and oil recovery: Capillarity;
 World Oil, 192, n 4. 77-83 (1981).

[2] Anderson. W. G.: Wettability literature survey. 1 a 6: J. of Petroleum Tech. (1986-1987).

(3) Mungan. N.: Enhanced oil recovery using water as a driving fluid: Interfacial phenomena and oil recovery: Wettability:World Oil, 192. n 5, 149-158 (1981).

[4] Morrow, N.R.,Lim, H.T., Ward, J.S.: Effect of crude oil induced wettability changes on oil recovery: SPE: 89 (February 1986).

(5) Fatt, I., Klikoff Jr., W.A.: Effect of fractional wettability on multiphase flow through porous media: Petroleum Trans., AIME: 216-246 (1959).

[6] Mardsen, S.S.: Wettability: The elusive key to water flooding; Petroleum Eng.: 82 (April 1965).

[7] Szabo, M.T.: Some aspects of polymer retention in porous media; Soc. Pet. Eng. J., 15, 323, 1975.

[8] Healy, R., Reed, R., Carpenter, C.: A laboratory study of microemulsion flooding: Soc. Pet. Eng. J., 15, 87, 1975.

[9] Goddard, R.: Fluid dispersion and distribution in porous media using the frequency response method: Soc. Pet. Eng. J., 6, 143. 1966.

[10] Bacri. J., Leygnac. C., Salin, D.: Evidence of capillary hyperdiffusion in two phase fluid flows; J. Phys. Lett. (Paris),

46 (1985) L-467.

[11] Bear, J.: Dynamics of fluids in porous media; American Elsevier. New York, 1967.

(12) Darcy. H.: Les fontaines publiques de la ville de Dijon: Dalmont. Paris. 1856.

[13] Burke, S., Plummer, W.: Gas flow through packed columns: Ind. Eng. Chem., 20, 1196-1200 (1928).

[14] Rose, H.E.: An investigation into the laws of flow of fluids through beds of granular material: Proc. Inst. Mech. Eng. 153, 141-148 (1945).

[15] Scheidegger. A.E.: Theoretical models of porous matter: Producers Monthly. 17, 17-23 (1953).

[16] Scheidegger. A.E.: The physics of flow through porous media: University of Toronto Press. Toronto. 1960.

[17] Groupe Poreux PC: Two component transport properties in heterogeneous porous media: Proc. de l'Ecole d'hiver des Houches sur la physique de la matiere finement divisée. 1985.

[18] Dussan, E.B.: Incorporating the influence of wettability into models of immiscible fluid displacement through a porous medium: AIP Conference. Proceeding 154, Physics and Chemestry of Porous Media II. Ridgefield, 1986.

[19] Laplace. P.S.: Mécanique Céleste; Suppl., 10 livre (1806).

[20] Batchelor. G. K.: An introduction to fluid dynamics. Cambridge University Press (1967).

[21] Rosen, M., Chertcoff, R., Calvo, A.: Longitudinal

Dispersion in displacement of miscible and immiscible fluids: Latin American Applied Research. 19: 23-29 (1989).

[22] Oger, L.: Etudes des correlations structures propietes dans les milieux granulaires modeles: Tesis de Doctorado. Rennes I. Francia. 1987.

[23] Perry, R.H., Chilton, C.H.: Chemical Engineers' Handbook.5th. Edition; Mc Graw Hill Book Co., 1973, New York.

[24] Homsy, G.M.: Viscous fingering in porous media; Ann. Rev. Fluid Mech. 1987, 19: 271-311.

[25] Gratton, C.. Rosen. M., Chertcoff. R.. Bidner. S.: Use of radioisotopes to measure concentration distribution inside porous media during displacement tests: Chem. Eng. Sci., Vol. 42. 8, 2055-2059, 1987.

[26] Knoll. G.F.: Radiation. detection and measurement: J. Wiley and Sons, 1979, New York.

[27] Marle, C.: Multiphase flow in porous media; Editions Technip, Paris, 1981.

[28] Dullien, F.A.L.: Porous media. fluid transport and pore structure: Academic Press. New York, 1979.

[29] Fried, J.J., Combarnous. M.A.: Dispersion in porous media; Advances in Hydroscience. v 7. 1971. 169-282.

(30) de Gennes. P.G.: Hydrodynamic dispersion in unsaturated porous media: J. Fluid Mech., 136 (1986).

[31] Pfankuch. H.O.: Contribution a l'étude des deplacement de fluides miscible dans un milieux poreux: Rev. Inst. Fr. Petrol. n 2, 18, 215-270 (1963).

[32] Saffman, P.G.: A theory of dispersion in a porous medium; J. Fluid Mech., n 3, 6, 321-349 (1959).

[33] Bear. J., Bachmat. Y.: A generalized theory on hydrodynamic dispersion in porous media: I.A.S.H. Symp. Artificial Recharge and Management of Aquifers. Haifa. Israel. IASH, P.N. 72, 7-16 (1967).

(34) Collins. R.E.: Flow of fluids through porous materials. Reinhold. New York. 1961.

[35] Morel-Seytoux. H.J.: Introduction to flow of immiscible liquids in porous media (R.J.M. de Wiest, Ed.), Cap. 11, 456-516, Academis Press. New York, 1969.

(36) Handy, L.L.: Determination of effective capillary pressures for porous media from imbibition data; Trans. AIME, 219, 75-80 (1960).

(37) Dullien, F.A.L., Lai, F., Macdonald, I.: Hydraulic continuity of residual wetting phase in porous media; J. of Colloid and Interface Sci., Vol. 109, n 1, January 1986.

(38) Holm. L., Csaszar. A., Bernard. G.: Field test shows STP advantage in waterflood: Oil Gas J., March 1, 72 (1965).

(39) Wilkinson, D.: Percolation effects in immiscible displacement; Phys. Rev. A, 34, 2 (1986).

(40) Buckley, S.E., Leverett, M.C.: Mechanism of fluid displacement in sand: Trans. AIME 146, 106-116 (1942).

[41] Welge, H.J.: A simplified method for computing oil recovery by gas or water drive: Trans AIME 195. 91-99 (1952).

[42] Lefur, B.: Influences de la Capillarité et de la gravité

sur le déplacement non miscible unidimensionel dans un millieux poreux: J. Mécan. 1 (1962).

[43] de Gennes, P.G.: Theory of slow biphasic flows in porous media: Physico Chemical Hydrodinamics, Vol 4. n 2. 175-185. 1983.

(44) Leygnac. C.: Etude d'ecoulements miscibles et non miscibles dans un milieu poreux par une methode acoustique: Tesis de Doctorado, Paris 6, Francia. 1986.

[45] En la ref.10. pag. 470. se lee: "... the dry sample is first saturated in oil with a vaccum impregnation technique.". Esto se trata, aparentemente. de un error de imprenta, ya que en una comunicación privada los autores indicaron que observaron el régimen de hiperdispersión solo en el caso en que el medio fuera saturado inicialmente con el fluido mas mojante.

(46) Bacri, J.C., Rosen. M., Salin. D.: Capillary hyperdiffusion as a test of wettability: Europhys. Lett., 11 (2), 127-132 (1990).

[47] Calvo. A., Chertcoff. R., Rosen. M., Guyon. E.: The study of displacement of immiscible fluids in porous media with constant pressure drop by means of nuclear tracers; Revue Phys. Appl., 24 (1989) 553-561.

[48] Chappuis, J.: Wettability of solid surfaces: A phenomenon where adsorption plays a major role: Proc. de l'Ecole d'hiver des Houches sur la physique de la matiere finement divisée, 1985.

(49) Sahimie. M., Davis. T., Scriven. L.: Dispersion in disordered porous media; Chem. Eng. Comm. (1983).

## PARTE B

# DESPLAZAMIENTO DE FLUIDOS INMISCIBLES EN MODELOS CAPILARES

## I. - INTRODUCCION

En la primera parte de este trabajo se ha mostrado la importancia que tienen los efectos capilares en procesos de desplazamientos de fluidos inmiscibles en medios porosos.

complejidad de su estudio no reside La sólo en la geométrica del intrincada estructura medio, sino en las considerables dificultades que presenta el estudio de los efectos capilares e hidrodinamicos considerados en forma independiente de la geometria aleatoria del lecho poroso.

Recubrir uniformemente una superficie plana con pintura, escribir con tinta sobre una hoja de papel con letras nitidas, rociar con aerosol un sólido en forma pareja, lubricar una pieza eficientemente. son sólo unos pocos ejemplos de la vida diaria de procesos en los cuales los efectos capilares juegan un rol preponderante.

Precisamente por ese motivo es que su estudio se remonta a largo tiempo atrás. La primera información científica sobre penetración capilar de un fluido es atribuida a Leonardo da Vinci (1), quien fue aparentemente el primer científico en observar el ascenso capilar. Los fundamentos de la teoría de la capilaridad, fueron establecidos por Young y Laplace [2,3] durante los primeros años del siglo XIX.

Sobre el final de ese siglo y comienzos de éste, se realizaron trabajos mas exhaustivos sobre la termodinámica y la cinética del avance capilar (4 a 11). A partir de ese momento, numerosos investigadores se dedicaron a este tema, pudiéndose encontrar una revisión de estos trabajos en artículos tales como los de Melrose. Morrow, van Brakel y de Gennes (12 a 15).

Sin siglos de embargo. dos después Laplace, la hidrodinámica en presencia de interfases y la dinámica del mojado particular, no están dilucidados en todos en sus especialmente cuando aspectos, se trata de un líquido desplazando a otro.

Esta parte del trabajo está dedicada entonces, al estudio experimental de la dinámica de interfases liquido-liquido en

modelos simples, constituidos por tubos capilares, de geometría bien definida y superfícies con características uniformes y reproducibles.

Se investiga la dinamica de una interfase líquido-líquido en procesos de imbibición y de drenaje realizados en tubos capilares con y sin film residual del líquido mas mojante sobre las paredes.

La alta sensibilidad del dispositivo utilizado permite realizar medidas bajo condiciones en las que los efectos capilares son predominantes.

En primer lugar se repasan los elementos teóricos necesarios para la comprensión del problema y su aplicación al estudio de desplazamientos en tubos capilares.

A continuación se hace una revisión de los trabajos teóricos y experimentales actualmente en discusión.

En el capítulo siguiente se describe el dispositivo experimental desarrollado y la técnica utilizada y se verifica su grado de precisión analizando desplazamientos de fluidos de distinta viscosidad: kerosene desplazando aire, agua desplazando kerosene y kerosene desplazando agua.

Posteriormente se estudian las características de la irrupción del fluido desplazante en un sistema de tres capilares interconectados, en procesos de imbibición y de drenaje.

Se presentan también. los resultados experimentales obtenidos en sistemas de un sólo capilar, en los que se estudió la variación de la presión capilar con la velocidad. Se analiza el movimiento estacionario de una interfase líquido-líquido, en procesos de primera y segunda imbibición y de drenaje.

Por último, se extiende este estudio experimental al análisis de los efectos transitorios observados en la etapa inicial del movimiento de una interfase y cuando la misma es sometida a un cambio brusco de presión.

### **II. - DEFINICIONES**

## II.1.- Sistemas con Dos Fases

Si se considera un sistema compuesto por dos fases en equilibrio separadas por una interfase plana de area A y espesor nulo, la energía libre del sistema es [16,17]:

$$E = E_1 + E_2 + E_s$$

donde  $E_i$  es la energia de la fase i (i=1. 2) y  $E_s$  es la energia de la interfase.

Esta energía de superficie proviene de la diferencia entre las fuerzas de atracción que sufren las moléculas en el seno de cada fase y aquellas que sufren en la superficie y es, por lo tanto, proporcional al área de la interfase. La constante de proporcionalidad se llama tensión interfacial entre las fases 1 y 2 y queda definida como:

$$\gamma_{12} = \left(\frac{\partial E}{\partial A}\right)_{T, p, n_1, n_2}$$

donde T y p son la temperatura y la presión del sistema y  $n_i$  y  $n_i$  el número de moles de los constituyentes 1 y 2.

La tensión interfacial debe ser positiva ya que de lo contrario, el sistema tendería a estados de menor energía haciendo que la interfase crezca hasta un punto tal que lo ocupe totalmente, lo que se contradice con la presencia de ambas fases.

Al ser  $\gamma$  positiva, las dos fases tienden a minimizar su superficie en común, es así como, en ausencia de campos externos, una gota de aceite inmersa en agua toma una forma esférica. De la misma manera un film de jabón extendido en un cuadro con uno de sus lados móvil, ejerce sobre éste una fuerza proporcional a  $\gamma$  y a la longitud del lado [18].

Este último ejemplo muestra que  $\gamma$  juega el papel de una

fuerza restauradora que inhibe el crecimiento del área de la interfase

II.1.1.- Ley de Laplace

Cuando la superficie de separación de las fases no es plana, las presiones a ambos lados de la interfase no serán iguales; su diferencia se llama presión superficial o presión capilar en el caso en que la interfase se encuentre en el interior de un tubo capilar.

Se puede demostrar [17], partiendo de condiciones de equilibrio termodinámico, que esta diferencia de presiones es:

$$p_1 - p_2 = \gamma \frac{d \Lambda}{d V_1}$$

donde  $p_1 y p_2$  son las presiones a ambos lados de la interfase y V, es el volumen de la fase 1.

Si la fase 1 adopta la forma de una esfera de radio R, se cumple que:

$$V_{1} = \frac{4}{3} \Pi R^{3} \qquad A = 4 \Pi R^{2}$$

y se obtiene, para ese caso, la llamada ecuación de Laplace:

$$p_1 - p_2 = 2 \frac{\gamma}{R}$$

Si la interfase presenta una forma mas compleja, la ecuación queda en función de los radios de curvatura principales de la superficie R' y R'':

$$\mathbf{p_1} - \mathbf{p_2} = \boldsymbol{\gamma} \left( \frac{1}{\mathbf{R}^{\prime}} + \frac{1}{\mathbf{R}^{\prime \prime}} \right)$$

II.2. - Sistemas con tres fases

En el caso de tener un sistema con tres fases, dos fluidos

inmiscibles y un sólido. la forma de la interfase entre ambos fluidos depende de la tensión superficial de cada fluido relativa al sólido y de la tensión superficial de uno de los fluidos respecto al otro (fig. 1).



Fig. 1.- Fuerzas capilares presentes sobre la línea de triple contacto.

Llamando  $\gamma_{gi}$ ,  $\gamma_{g2}$  y  $\gamma_{i2}$  a las tensiones superficiales entre el sólido y el fluido 1; entre el sólido y el fluido 2 y entre ambos fluidos respectivamente. se define el parametro de esparcimiento o de "spreading" S como [19]:

$$S = \gamma_{s2} - \gamma_{s1} - \gamma_{12}$$

Este parámetro está relacionado con la capacidad de un fluido de esparcirse o de "mojar" al sólido. Esto puede verse con ayuda de la fig. 2: la energía de superfície, por unidad de área de una interfase sólido-fluido 2 es  $\gamma_{s2}$  (fig. 2a); en cambio la energía de superfície de la misma unidad de área cubierta por un film de fluido 1 es  $\gamma_{s1} + \gamma_{s2}$  (fig. 2b).

S es, entonces, la diferencia de energia entre ambos sistemas. Si S es menor que cero, el primer sistema (fig. 2a) tiene menor energía que el segundo. Por lo tanto, un sistema como el que se muestra en la fig. 2c. no evolucionará a la situación mostrada en la fig. 2b por ser este último un estado de mayor energía. Esto quiere decir que la gota no se esparcirá.

Si S es mayor que cero, el sistema de menor energía sera el mostrado en la fig. 2b y, por lo tanto, la gota se esparcira totalmente sobre el sólido.



Fig. 2.- La energía de superficie por unidad de área en a) es  $\gamma_{g2}$ . En b) ambas interfases contribuyen y la energía resulta igual a  $\gamma_{g2} + \gamma_{g1}$  si la fase de fluido 1 se supone con suficiente espesor para que ambas interfases sean independientes entre sí. Dependiendo del signo de S la gota en c) se esparcirá o no.

## II.2.1. - Relación de Young

Como se vió en el punto anterior. cuando S es negativo, una gota no se esparce totalmente sobre la superficie sólida. El ángulo  $\theta$  que forma la interfase con la superficie del sólido se

llama angulo de contacto (fig. 3).



Fig. 3. - Fuerzas capilares sobre la línea de triple contacto. La ecuación de Young expresa el balance de las componentes horizontales de dichas fuerzas.

Cuando las fuerzas capilares que actúan sobre la línea de triple contacto se equilibran en el plano del sólido, se está en presencia del caso estático, el ángulo de contacto recibe el nombre de ángulo de contacto estático  $\theta$  y se cumple que:

$$\gamma_{s2} - \gamma_{s1} - \gamma_{12} \cos \theta_{e} = 0$$

de donde se obtiene la relación de Young [2]:

$$\cos \theta_{\theta} = \frac{\gamma_{g2} - \gamma_{g1}}{\gamma_{12}}$$

Si  $\theta_{p} < 90^{\circ}$  se dice que el fluido l es más mojante que el fluido 2 (fig. 4a), y si  $\theta_{p} > 90^{\circ}$  entonces el fluido 2 es más mojante que el fluido 1 (fig. 4b).

Escribiendo la relación de Young en términos de S. se obtiene:

$$\cos \theta_{\theta} = 1 + \frac{S}{\gamma_{12}}$$

queda claro que si el parametro S es positivo.  $\theta_{\rho}$  no está definido, lo que significa que no puede haber balance de fuerzas en el plano del sólido y el líquido se esparce totalmente. Si S es nulo,  $\theta_{\rho} = 0$ . lo que también indica que el fluido 1 forma una película sobre el sólido. En cualquiera de los dos casos se dice que el fluido 1 moja totalmente al sólido.



Fig. 4. - En a) el fluido 1 es más mojante que el 2 ( $\theta_e < 90^{\circ}$ ). En b), se presenta el caso contrario ( $\theta_a > 90^{\circ}$ ).

II.2.2. - Tubos Capilares

Al ponerse en contacto dos fluidos inmiscibles en el interior de un tubo capilar, la interfase entre ambos fluidos se curva formando con el solido, un ángulo tal que se equilibren las fuerzas actuantes en la línea de contacto. De acuerdo a cual sea esta curvatura de equilibrio y a las presiones externas aplicadas a ambos fluidos, el menisco avanzará, permanecerá en reposo o retrocederá.

De cualquier manera, las presiones a ambos lados de la interfase no serán iguales. Su diferencia es la presión capilar.

Quizas el ejemplo cotidiano mas conocido de este fenómeno es el que se produce cuando se pone en contacto un tubo capilar vertical con un líquido: si el líquido es mas mojante que el aire, asciende en el tubo hasta alcanzar una altura de

equilibrio h. Si, por el contrario, el aire es mas mojante que el líquido, éste desciende respecto de la superficie libre.

Al poner en contacto un extremo del capilar con el líquido, la interfase fluido-aire interseca la superficie sólida con un cierto ángulo de contacto  $\theta$ .

Si el líquido en donde se sumerge el capilar es más mojante que el aire, será  $\theta < 90^{\circ}$ , y la presión justo debajo del menisco (punto A de la fig. 5a) será menor que sobre el (punto B de la misma figura) en una cantidad igual a la presión capilar, p.



Fig. 5.- Ascenso capilar. a) Situación inicial. b) Situación de equilibrio.

Pero como  $p_{p}$  es igual a  $p_{D}$ . es  $p_{A} < p_{D}$ , lo que produce un desequilibrio de presiones en el volumen del líquido. Esto trae como consecuencia un flujo de líquido hacia A y por lo tanto el ascenso de la interfase dentro del tubo capilar (fig. 5b).

El flujo se detiene cuando la presión en el punto D iguala a la presión en el punto E; en este caso cuando el líquido alcanza una altura apropiada en el campo gravitatorio. Es decir:

$$p_{\mathbf{p}} = p_{\mathbf{E}}$$

$$p_{\mathbf{A}} + \rho_{\mathbf{I}}gh = p_{\mathbf{B}} + \rho_{\mathbf{A}}gh$$

$$p_{\mathbf{c}} = p_{\mathbf{B}} - p_{\mathbf{A}} = \Delta\rho gh$$

donde  $\Delta \rho$  es la diferencia entre la densidad del líquido  $(\rho_{l})$  y la del aire  $(\rho_{a})$ , g la aceleracion de la gravedad y h la altura alcanzada por la columna dentro del tubo, medida a partir de la superficie libre del líquido.

Si se supone que el menisco tiene forma de casquete esférico de radio r (r =  $b/\cos \theta_{e}$ ). la igualdad de presiones queda, de acuerdo a la Ley de Laplace:

$$p_{c} = \frac{2 \gamma \cos \theta_{e}}{b} = \Delta \rho g h$$

donde b es el radio del tubo capilar.

## II.2.3. - Dinámica de interfases en tubos capilares horizontales

Un fluido moviéndose en régimen laminar en el interior de un tubo capilar cumple la ley de Poiseuille [20]:

$$\mathbf{v} = \frac{\mathbf{b}^2}{8\mu} \text{ grad } \mathbf{p} \tag{1}$$

donde  $\mathbf{v}$  es la velocidad media del fluido, b el radio del capilar, p la presión en el seno del fluido y  $\mu$  la viscosidad del mismo.

Si se considera el caso de flujo bifásico incompresible en un tubo capilar horizontal: dos fluidos inmiscibles donde el fluido 1, de viscosidad  $\mu_1$  desplaza al fluido 2 de viscosidad  $\mu_2$ (fig. 6), y se aplica la ley de Poisseuille a cada una de las fases, se obtiene:

$$v_{1} = \frac{b^{2} (p_{0} - p_{1})}{8 \mu_{1} x} \qquad y \qquad v_{2} = \frac{b^{2} (p_{2} - p_{3})}{8 \mu_{2} (L - x)}$$
(2)

donde  $p_{p_{g}}$  y  $p_{g}$  son las presiones a la entrada y a la salida del tubo capilar respectivamente,  $p_{i}$  y  $p_{i}$  son las presiones a ambos lados de la interfase, L es la longitud del tubo y x la posición de la interfase, al tiempo t, medida desde la entrada del capilar.





Por continuidad, el caudal del fluido 1 es igual al del fluido 2 y si se considera un capilar de area constante, debe ser:

$$v_1 = v_2 = v = \frac{dx}{dt}$$
(3)

Combinando la ec. (2) con la (3) y con la definición de presión capilar:

$$p_c = p_z - p_1$$

se obtiene la denominada ecuación de Washburn [7]:

$$\left[\mu_{1} \times + \mu_{2} (L - \chi)\right] \frac{dx}{dt} = \frac{b^{2}}{8} (\Delta p + p_{c})$$
(4)

donde  $\Delta p = p_{p_{g}} - p_{g}$ .

De esta expresión resulta que si  $\mu_1 > \mu_2$  la velocidad de

la interfase disminuirá al aumentar x y por el contrario si  $\mu_4 < \mu_2$  la velocidad aumentará con x.

Para el caso en que  $\mu_i = \mu_2 = \mu$ , la ecuación (4) se reduce a:

$$\mu L v = \frac{b^2}{8} (\Delta p + p_c)$$
 (5)

de donde se desprende que. cuando se trabaja con fluidos de igual viscosidad, la velocidad de la interfase debe ser constante independientemente de su posición a lo largo del tubo.

El proceso en el cual un fluido mas mojante desplaza a uno menos mojante se llama imbibición y presenta un menisco como el de la fig. 6  $(p_2 > p_1; p_2 > 0)$ . El proceso inverso, o sea un fluido menos mojante que desplaza a uno mas mojante, tendrá un menisco como el de la fig. 7 y se llama drenaje  $(p_1 > p_2; p_2 < 0)$ .



Fig. 7.- Forma adoptada por la interfase en un drenaje.

Como se ve comparando (1) y (5), para el mismo capilar, fluidos de igual viscosidad y con igual diferencia de presión aplicada  $\Delta p$ , la velocidad resulta mayor en un flujo bifásico que en un flujo monofásico cuando p<sub>c</sub> es positiva, que corresponde, como se indicó mas arriba, a una imbibición.

Si p<sub>e</sub> es negativa, que es el caso de un drenaje. la velocidad en un flujo bifásico es menor que la velocidad en
flujo monofásico.

La fig. 8a muestra un capilar con flujo monofásico y el gráfico cualitativo de la distribución de presion en el mismo.



Fig. 8a.- Distribución de presiones en el interior de un capilar horizontal conectado a dos reservorios. Flujo monofásico.

En las figs. 8b y 8c se muestra la distribución de presión para flujo bifásico en el caso de una imbibición y de un drenaje respectivamente. Para una imbibición. la presión del fluido 1 justo antes de la interfase debe ser menor que la presión del fluido 2 despues de la interfase en una cantidad igual a la presión capilar.

Para un drenaje esta situación se invierte, siendo la presión en el fluido 1 antes de la interfase, mayor que la del fluido 2 despues de la misma, en una cantidad igual a la presión capilar.

En ambos gráficos se consideran fluidos de igual viscosidad  $(\mu_1 = \mu_2)$  por lo que, de acuerdo a (1), el gradiente de presión a ambos lados de la interfase es el mismo.



Figs. 8b y 8c.- Distribución de presiones en el interior de un tubo capilar para flujos bifásicos. (b): imbibición, (c): drenaje. En ambos casos las viscosidades de los fluidos son iguales.

De la ecuación (4) se desprende que una imbibición es posible (ya que  $p_c > 0$  y por lo tanto favorece al flujo) en tres

situaciones diferentes:

- cuando la presión de entrada es mayor que la presión de salida  $(\Delta p > 0)$ , imbibición forzada,

- cuando la presión de entrada es igual a la de salida ( $\Delta p = 0$ ), imbibición espontánea,

- cuando la presión de entrada es menor que la de salida ( $\Delta p < 0$ ), imbibición inhibida, siempre que:

$$|\Delta p| < p$$

En un drenaje en cambio. la presion capilar se opone al flujo ( $p_c < 0$ ), por lo tanto, para producirlo es necesario que se cumpla:

# ∆p > |p |

En el caso en que el menisco se encuentre en reposo. la diferencia de presión entre ambos lados de la interfase recibe el nombre de presión capilar estática y como se vió en el punto II.2.2, puede expresarse como:

$$p_{c}^{\bullet} = \frac{2 \gamma \cos \theta_{e}}{b}$$

siendo  $\theta_{p}$  el ángulo de contacto estático y b el radio del capilar.

Sin embargo, cuando el menisco está en movimiento, el ángulo de contacto  $\theta$  varía con la velocidad (21 a 24) y por lo tanto, también lo hace la presión capilar. En este caso se la llama presión capilar dinámica,  $p_a^d$ .

El objetivo de esta parte del trabajo es estudiar experimentalmente la variación de la presión capilar dinámica con la velocidad de avance de la interfase es decir, para distintas presiones externas aplicadas.

La ecuación (4) brinda una herramienta para evaluar esta variación. Despejando la presión capilar dinámica,  $p_c^d$ , de esa ecuación e integrando ambos miembros con respecto al tiempo, se obtiene la relación:

$$\int_{0}^{t_{1}} p_{e}^{d} dt = \frac{8}{b^{2}} \left( \frac{\mu_{1} - \mu_{2}}{2} x_{i}^{2} + \mu_{2} L x_{i} \right) - \Delta p t_{i}$$
(6)

donde x, es la posición del menisco en el instante t.

Como se mostrara en el punto IV.7. la técnica experimental usada permite medir los pares de valores  $(x_i, t_i)$ . Con esos datos experimentales se calcula el miembro derecho de la ec. (6) y se lo grafica en función del tiempo. Calculando la derivada local de la curva así obtenida se encuentra  $p_a^d(t)$ .

Si se trabaja con dos liquidos inmiscibles de igual viscosidad  $\mu$ , puede despejarse la presión capilar de la ec. (5) obteniendo:

$$p_{c}^{d} = \frac{\beta}{b^{2}} \mu L v - \Delta p$$
 (7)

Para cada Ap aplicado se mide la velocidad v resultante, en este caso independiente de la posición del menisco, y se calcula la presión capilar dinámica. Se obtiene de esta manera la variación de la presión capilar dinámica con la velocidad.

## II.2.4. - Sistemas de Capilares Interconectados

Aplicando los mismos criterios que los desarrollados en el punto anterior para un capilar, a sistemas de tres capilares de igual diámetro (D) y longitud (L), interconectados de la forma mostrada en la fig. 9, es posible obtener relaciones analíticas entre las presiones en juego y estudiar el desplazamiento de las interfases.

Cuando el menisco se encuentra antes del nodo (fig. 9a) la ecuación de balance de masa es:

$$\tilde{Q} = 2 q$$

donde Q es el caudal en el capilar de entrada y q es el caudal

en cada uno de los capilares de salida.



Fig. 9.- Sistema de tres capilares interconectados. a) menisco antes del nodo, b) el nodo ya ha sido invadido por el líquido desplazante.

Utilizando la Ley de Poiseuille a ambos lados de la interfase, Q puede expresarse como:

$$Q = \frac{\Pi D^{4} (p_{e}^{-}p_{1})}{32 \mu_{1}x} = \frac{\Pi D^{4} (p_{2}^{-}p_{n})}{32 \mu_{2} (L-x)}$$

y aplicando la misma ley a cualquiera de los capilares de salida se obtiene:

$$q = \frac{\Pi D^{4} (p_{n} - p_{g})}{32 \mu_{2} L}$$

donde se ha considerado que las dimensiones del nodo son suficientemente pequeñas frente a L como para poder tomar la presión en su interior, p<sub>n</sub>, como constante.

Tomando  $p_{g} = 0$ ,  $p_{c} = p_{2} - p_{1}$  y despejando la presión de nodo de las ecuaciones anteriores se llega a:

$$p_{n} = \frac{\mu_{2} (p_{e} + p_{c})}{\mu_{2} + \frac{2}{L} [\mu_{1} + \mu_{2} (L - x)]}$$

Analogamente, cuando el fluido desplazante ya ha invadido los capilares de salida, recorriendo una distancia  $x_1$  en el capilar 1 y  $x_2$  en el 2 (fig. 9b), el caudal Q en el capilar de entrada tiene la forma:

$$Q = \frac{\Pi D^4 (p_e - p_n)}{32 \mu_1 L}$$

y los caudales  $q_1$  y  $q_2$  en los capilares de salida 1 y 2 respectivamente, pueden expresarse como:

$$q_{1} = \frac{\Pi D^{4} (p_{n} - p_{1})}{32 \mu_{1} x_{1}} = \frac{\Pi D^{4} (p_{2} - p_{3})}{32 \mu_{2} (L - x_{1})}$$
$$q_{2} = \frac{\Pi D^{4} (p_{n} - p_{1})}{32 \mu_{1} x_{2}} = \frac{\Pi D^{4} (p_{2}' - p_{3})}{32 \mu_{2} (L - x_{2})}$$

donde  $p_1$ ,  $p_2$ ,  $p_1'$  y  $p_2'$  son las presiones a ambos lados de la interfase en el capilar 1 y 2 respectivamente.

La ecuación de balance de masa es ahora:

$$\dot{Q} = q_1 + q_2$$

Tomando nuevamente  $p_{g} = 0$ ,  $p_{c} = p_{1} - p_{1}$  y despejando la. presión de nodo se obtiene:

$$p_{n} = \frac{p_{e} \overline{\mu} \overline{\mu}' - p_{c} \mu_{i} L (\overline{\mu} + \overline{\mu}')}{\overline{\mu} \overline{\mu}' + \mu_{i} L (\overline{\mu} + \overline{\mu}')}$$

donde:

$$\overline{\mu} = \mu_{1} x_{1} + \mu_{2} (L - x_{1}) \qquad \overline{\mu}' = \mu_{1} x_{2} + \mu_{2} (L - x_{2})$$

Es decir que, conociendo las viscosidades de los fluidos, la diferencia de presión entre la entrada y la salida del sistema y la posición de las interfases, se puede calcular el valor de la presión en el nodo en función de la presión capilar.

En el capitulo VI se verá que por medio de estas ecuaciones se pueden explicar las diferentes características, descriptas en los puntos V.2.1 y V.2.2 de la primera parte de este trabajo, que presenta la irrupción del fluido desplazante de un medio poroso, según se trate de una imbibición o un drenaje.

## II.3. - Parámetros Característicos

En el tratamiento anterior se ha fijado la atención en los efectos capilares. Sin embargo, en los sistemas descriptos actúan también fuerzas debidas a los efectos de inercia, viscosos y gravitatorios {25}.

Como el objetivo de este trabajo es estudiar la variación de los efectos capilares con la velocidad de la interfase, se utilizan sistemas (fluidos - capilar) y velocidades de avance con los cuales se puede asegurar que predominan dichos efectos.

Se definirán entonces tres parametros, longitud capilar, número capilar y número de Weber. que permiten comparar la influencia relativa en el desplazamiento. de cada uno de los efectos mencionados. Longitud capilar

Al igual que cuando se trabaja en medios porosos, donde se definió el número de Bond (par. II.5), al trabajar con interfases en el interior de tubos capilares. es necesario asegurarse de que los efectos gravitatorios no afecten la forma del menisco.

Ello se logra exigiendo que las presiones capilares involucradas, del orden de  $\gamma/D$ , sean mayores que las presiones hidrostàticas en juego, del orden de  $\Delta \rho$  g D. Se llega, entonces, a que los efectos capilares predominaran sobre los gravitatorios si:

$$D < \left(\frac{\gamma}{\Delta \rho g}\right)^{1/2}$$

El segundo termino de la desigualdad se conoce con el nombre de longitud capilar.

En las experiencias que se presentan en este trabajo, la mínima longitud capilar utilizada es del orden de 0.3 cm ( $\gamma \simeq 70$  dinas/cm,  $\Delta \rho \simeq 0.8$  gr/cm<sup>3</sup>); mientras que el diámetro de los capilares usados es D = 0.1 cm, por lo que queda asegurado en todos los casos el predominio de los efectos capilares frente a los gravitatorios.

### Número Capilar

Este número adimensional ya se definió en la primera parte de este trabajo (par. II.5) como el cociente entre la pérdida de carga viscosa y la presión capilar. En este caso, de acuerdo a la Ley de Poiseuille y a la Ley de Laplace, queda:

$$Ca = \frac{\mu v}{\gamma}$$

Para que predominen los efectos capilares debe ser Ca << 1. El máximo número capilar alcanzado durante las experiencias realizadas es del orden de  $10^{-9}$ .

Número de Weber

Finalmente, el numero de Weber, We, es el parametro que permite comparar los efectos inerciales, proporcionales a  $\Delta \rho v^2$ , con los efectos capilares ( $\simeq \gamma/D$ ). Por lo que:

We = 
$$\frac{\Delta \rho \ v^2 \ D}{\gamma}$$

Si We <<1 se asegura el predominio de los efectos capilares sobre los inerciales. Con los valores utilizados en las experiencias resulta, en todos los casos, We <  $10^{-9}$ .

## III. - ANTECEDENTES TEORICOS Y EXPERIMENTALES

## III.1.- Revisión de los Principales Resultados Experimentales Previos

Los fundamentos de la teoría sobre capilaridad fueron establecidos por Young y Laplace [2,3] a principios del siglo XIX. El descubrimiento de las leyes que gobiernan el movimiento de fluidos viscosos surgió algunos años después con los trabajos de Navier. Poisson y Stokes [25].

La noción de la dependencia de la presión capilar con la velocidad de avance de la interfase aparece recién en 1949 en una monografía sobre el esparcimiento de líquidos [26]. En dicha monografía se discute el coeficiente de esparcimiento pero no se hace mención acerca de la existencia de un ángulo de contacto dinámico.

Recién en 1960 se obtienen los primeros resultados experimentales sobre este tema, los cuales sin embargo, eran fuertemente dependientes de la pureza de los líquidos empleados y de la limpieza de las superficies sólidas.

Hubo que esperar hasta la década del 70 para disponer de resultados experimentales sistemáticos concernientes a la dinámica del mojado [21]. No obstante, esos resultados estaban esencialmente limitados al caso de un líquido desplazando un gas.

Las distintas experiencias de esparcimiento de gotas daban resultados relativamente concordantes entre sí, no siendo el caso del desplazamiento de fluidos en tubos capilares o en geometrías mas complicadas. La razon es, sin duda, que es mas sencillo controlar el estado de la superficie de un sustrato plano y asegurarse de la pureza del fluido que forma pequeñas gotas, que hacer lo mismo en geometrías mas complejas y con una cantidad de líquido mas importante.

Se puede distinguir entonces, dos tipos de experiencias: aquellas en las que se estudia el esparcimiento espontáneo de gotas líquidas sobre un sustrato sólido y aquellas que centran

su atención en el movimiento de una interfase en el interior de un tubo capilar o de geometrías simples pero restringidas.

Las experiencias de esparcimiento espontáneo han tenido un gran progreso en estos últimos años. Por un lado, gracias a los trabajos teóricos efectuados por de Gennes (15.27,28) y por otro, gracias al estudio experimental de los perfiles de la gota y de film precursor realizado por Cazabat (29). Estas experiencias se desarrollan a muy bajos numeros capilares y los ángulos de contacto toman valores pequeños (30 a 33).

Se ha demostrado que en las situaciones de mojado total, es decir donde el ángulo de contacto es nulo, existe delante de la gota macroscópica, un film precursor de espesor inferior al micrón. El film precursor, observado por primera vez por Hardy [34], fue estudiado por medio de experiencias macroscópicas [35, 36] y microscópicas [37] cuya interpretación completa debe considerar la naturaleza molecular discontinua del fluido.

En cuanto a las experiencias que estudian el movimiento de una interfase en el interior de tubos capilares, cabe mencionar como precursoras a las realizadas por Bell y Cameron en 1906 [38] y por Washburn en 1921 [7].

En las primeras se obtienen resultados experimentales sobre la dinámica del desplazamiento de aire por agua, alcohol y benceno, del interior de un tubo capilar horizontal. Se establece allí que el cuadrado de la distancia recorrida por la interfase es proporcional al tiempo en que la recorre.

Washburn. por su parte. deduce la ecuación que lleva su nombre (ec. 4 del par. II.2.3) y realiza experiencias que la verifican dentro de la precisión de su dispositivo experimental, en tubos capilares verticales y horizontales. En ese mismo trabajo predice el diferente comportamiento de la interfase en tubos que han sido previamente saturados con el líquido mas mojante.

Posteriormente, Eley y Pepper [39] retoman este tipo de experiencias, estudiando imbibiciones espontaneas ( $\Delta p = 0$ ) en capilares horizontales. Trabajan con tubos premojados con el fluido desplazante y no observan variación de la presión capilar

con la velocidad de la interfase.

Las primeras experiencias de desplazamiento de una interfase en el interior de un tubo capilar orientadas a investigar la variación del ángulo de contacto, es decir de la presión capilar, con la velocidad de la interfase. son las realizadas por Hoffman en 1975 (21). Las mismas abarcan una amplia gama de números capilares.

Hoffman desplaza, por medio de un pistón, un menisco en el interior de un tubo a velocidad constante, toma fotografías del menisco y mide el angulo de contacto. Determina así, la variación del ángulo de contacto dinamico con la velocidad. En la fig. 10 se muestran sus resultados.





Fig. 10. - Resultados experimentales de Hoffman [21].

Los fluidos utilizados son diversos aceites que, en algunos casos, presentan mojabilidad total respecto a la superficie sólida y en otros el ángulo de contacto es cercano a 70°. En todas las experiencias el fluido desplazado es aire.

Hoffman presenta sus resultados experimentales superpuestos sobre una curva maestra (fig. 10), mostrando la existencia de una función  $f(\theta)$  unica tal que:

 $f(\theta_{d}) - f(\theta_{e}) = Ca$  y = f(0) = 0

Esto significa que, para sistemas donde el angulo de contacto estático es distinto de 0, el angulo de contacto dinámico puede deducirse a partir de los datos obtenidos en sistemas que presentan mojado total ( $\theta_{e} = 0$ ) produciendo un corrimiento en el número capilar en una cantidad  $f(\theta_{e})$ .

Estos resultados fueron analizados por Tanner [22] quien a partir de las ecuaciones hidrodinámicas simplificadas obtuvo, para ángulos de contacto estáticos nulos y dinámicos pequeños, una dependencia del ángulo de contacto con la velocidad de la forma:

 $\theta_{\rm d} \propto {\rm Ca}^{1/9}$ 

Esta expresión, conocida como Ley de Tanner, fue deducida teóricamente en forma mas rigurosa por de Gennes [15].

En situaciones de mojado total, la Ley de Tanner es confirmada por diversas experiencias posteriores. En cambio, en el caso de mojado parcial ( $\theta \neq 0$ ) la situación es menos clara.

Elliot y Riddiford [40] estudiaron la variación del ángulo de contacto en una geometría diferente: crecimiento de una gota a velocidad radial constante entre dos placas paralelas. Sus resultados muestran que el ángulo de contacto permanece constante hasta que Ca llega a un valor cercano a  $10^{-7}$ . Para Ca mayores observan un crecimiento lineal de  $\theta$  con Ca, con un factor de proporcionalidad del orden de  $10^{5}$ .

Cain y colab. [41] observaron un comportamiento en parte similar. midiendo las alturas de los meniscos formados sobre láminas de vidrio sumergidas en agua a diferentes velocidades.

Sus resultados muestran un crecimiento lineal del angulo de contacto hasta Ca  $\simeq 10^{-8}$ , luego permanece constante hasta Ca  $\simeq 10^{-7}$  para, posteriormente, volver a crecer linealmente con Ca, con un prefactor similar al encontrado por Elliot y Riddiford.

Mumley, Radke y Williams  $\{42\}$ , en experiencias realizadas a números capilares mas elevados, estudiaron el ascenso capilar en mezclas de agua con glicerol desplazando aceites siliconados o alcanos en tubos de 1 y 2 mm de diametro. La gama de viscosidades investigada es de  $5.10^{-3}$  a 2 cp, el número capilar varía aproximadamente de  $10^{-5}$  a  $10^{-2}$ . Los tubos fueron preparados de dos formas distintas: con y sin film de fluido mojante sobre las paredes.

Estos autores definen una "fuerza de exceso"  $F^{T}$  a partir de la ecuación de Washburn, tal que:

 $F_r + F^* = F_c$ 

donde  $F_c$  es la fuerza capilar y  $F_r$  es la suma de la fuerza viscosa y la fuerza creada por el gradiente de presión hidrostática.

La "fuerza de exceso" que miden representa el apartamiento del movimiento, en las proximidades de la línea de contacto, de un regimen de Poiseuille y es proporcional a la presión capilar dinámica.

Sus resultados derivan en una relación entre el número capilar y el ángulo de contacto de la forma:

$$\theta_{\rm d} \propto {\rm Ca}^{1/2}$$

Fermigier [24] ha realizado una importante contribución utilizando un dispositivo experimental en el cual una vez formada la interfase en el interior de un tubo capilar, mueve éste a velocidad constante y fotografía el menisco. De esta forma mide ángulos de contacto dinámicos para interfases líquido-aire y líquido-líquido en función del numero capilar y para distintas relaciones de viscosidad.

El rango de números capilares estudiado es de Ca =  $10^{-4}$  a Ca = 1. Los resultados que obtiene para interfases líquido-aire concuerdan con los de Hoffman-Tanner y con la teoría desarrollada por Cox cuyos aspectos fundamentales se describirán en el siguiente parágrafo.

En cambio, en los sistemas líquido-líquido los ángulos medidos por Fermigier son sistemáticamente superiores a los predichos por Cox (fig. 11). El autor atribuye esta diferencia a las heterogeneidades de la superficie del sólido.



Fig. 11. - Resultados experimentales de Fermigier [24] comparados con las predicciones teóricas de Cox [23], para sistemas líquido -líquido con cociente de viscosidades  $\lambda$ . A  $\lambda = 0,1$  le corresponde la curva 1 y los triángulos. A  $\lambda = 1$ , la curva 2 y los círculos.

Este es otro aspecto importante del problema: el estudio

del efecto de las características del sustrato sólido, sobre el comportamiento de las interfases. Con este fin. se ha investigado el efecto de la rugosidad sobre el desplazamiento de fluidos. utilizando defectos periodicos [43] y defectos aleatorios [44].

En realidad, muchas experiencias de desplazamiento en capilares ponen en juego superficies rugosas. Hoffman utiliza tubos capilares calibrados donde el proceso de fabricación deja inevitablemente rayaduras, sobre todo longitudinales, sobre la superficie interna [21].

Blake (45) por su parte, mide el angulo de contacto que se forma cuando una película fotografica se sumerge verticalmente en una cubeta con agua destilada. Los ángulos de contacto son medidos en forma directa con un goniometro o con técnicas de filmación en video de alta velocidad.

Los resultados de Blake, que se muestran en la fig. 12. presentan dos comportamientos diferentes del ángulo de contacto con la velocidad: hasta números capilares del orden de  $10^{-5}$ , el ángulo de contacto aumenta marcadamente con la velocidad, mientras que para numeros capilares mayores que  $10^{-9}$  este aumento es mucho mas suave.

Existe una zona intermedia donde los valores medidos por Blake oscilan entre ambos comportamientos, habiendo observado que en ese rango de velocidades el movimiento de la interfase no es estacionario sino a pequeños saltos ("stick-slip").

Kennedy [46], Burley y Kennedy [47] e Inverarity [48] obtuvieron resultados similares en experiencias del mismo tipo: inmersión de cintas planas de poliester en soluciones acuosas de glicerina y de filamentos de vidrio en soluciones de poliestireno en xilano.

Blake y Haynes [49] desarrollan una teoría que explica estos resultados, basada en enfatizar el rol de los eventos moleculares que ocurren en la linea de triple contacto como determinantes en el proceso de mojado. La misma sera analizada en el próximo parágrafo ya que con las ideas allí propuestas pueden ser explicados satisfactoriamente los resultados

obtenidos en este trabajo.



Fig. 12. - Resultados experimentales de Blake [45]. Diferencia entre la presión capilar estática y la dinámica en función del logaritmo de la velocidad.

III.2. - Descripción de los Desarrollos Teóricos Previos

Las principales contribuciones teoricas a este tema pueden dividirse en dos categorías: las basadas en la mecánica de fluidos o punto de vista macroscopico y las que tratan el problema desde un punto de vista microscópico.

Para la mecánica de fluidos, el movimiento de la línea de contacto plantea un problema no trivial: la velocidad de un líquido fluyendo en el interior de un tubo debe hacerse nula sobre la superficie de la pared. Evidentemente la línea de

contacto no cumple esta condición.

Este problema ha sido solo parcialmente resuelto, aunque ya es ampliamente reconocido que es necesario modificar las condiciones de contorno clásicas de velocidad nula sobre la pared y permitir un deslizamiento limitado entre el fluido y el solido en la vecindad de la linea de contacto [50,51].

Si no se considera deslizamiento, la fuerza ejercida por el fluido sobre el solido resulta localmente divergente (52). Las bases físicas y las condiciones que producen el deslizamiento son aun tema de discusión.

La interpretación del comportamiento del angulo de contacto, la relación del valor obtenido experimentalmente con la velocidad y con las propiedades materiales y geométricas del sistema no han sido totalmente resueltos.

Esto se debe a la comprensión parcial que se tiene hasta el momento, de la naturaleza del angulo de contacto en puntos muy cercanos a la línea de contacto aún en condiciones de equilibrio.

En un trabajo teórico Rowlinson y Widom [53] indican que no sólo las fuerzas intermoleculares pueden causar un apartamiento del ángulo local respecto de su valor macroscopico: sino que, a nivel molecular, la zona de contacto de las tres fases: la interfase fluido-fluido y su ángulo de contacto dejan de tener un significado geométrico preciso.

La situación está un poco mas clara para sistemas en los cuales los fluidos presentan un ángulo de contacto nulo (mojabilidad total). Como ya se dijo. se ha demostrado experimentalmente que en estos casos un film precursor se mueve delante de la interfase.

Se entiende que la formación del film precursor se debe a las fuerzas de atracción molecular entre el líquido y el sólido, que dan lugar a valores positivos del coeficiente de esparcimiento S. Se considera que estos fenómenos proveen la fuerza necesaria para que se produzca el avance del film [54].

Un modelo sencillo del proceso de mojado mediante un film precursor es aquel en el cual se supone que el flujo en el

interior del film precursor puede ser considerado unidimensional. Es decir que el movimiento del frente líquido es tratado en forma separada al de la línea de contacto. De esta manera puede considerarse que el fluido se desplaza sobre una superficie previamente mojada.

Bajo estas condiciones, las ecuaciones hidrodinamicas pueden ser resueltas explicitamente y se obtiene una ley cubica para la dependencia de la velocidad con el ángulo de contacto [15, 22].

Se encuentran expresiones similares para sistemas que no presentan film precursor pero solo si se excluye formalmente del tratamiento hidrodinamico la zona cercana a la linea de contacto. Como el tamaño de esta region no tiene un significado físico claro, se lo ha tratado como un parametro de ajuste [22].

Cox (23), por ejemplo. trata la presión capilar como una perturbación de la interfase y desarrolla  $(\theta_d - \theta_e)$  en serie de potencias del número capilar. De esta manera calcula el ángulo de contacto dinámico independientemente de las hipótesis físicas utilizadas para describir la estructura microscópica de la interfase.

Las principales conclusiones de su trabajo son las siguientes: el ángulo de contacto dinámico  $\theta_{d}$ , medido lejos de la línea de contacto, está relacionado al ángulo de contacto  $\theta_{v}$ , medido a una distancia microscópica de la misma, por:

$$g(\theta_{d}) = g(\theta_{v}) + Ca \ln \left(\frac{L}{\alpha}\right)$$

donde  $g(\theta)$  es una función que calcula analíticamente y L y  $\alpha$  son longitudes, macroscópica y microscópica respectivamente, que caracterizan al sistema. L es tomado como el diámetro del tubo capilar y  $\alpha$ , que se deja como variable de ajuste, se identifica con la distancia en la cual se produce deslizamiento o, en caso de haberlo, con el espesor del film precursor. Generalmente se toma 5 ordenes de magnitud menor que L. El ángulo microscópico  $\theta_{c}$  es interpretado como el ángulo de contacto estático  $\theta_{c}$ .

Para sistemas con ángulo de contacto estático nulo, ángulos

dinámicos cercanos al estático y viscosidad del fluido desplazado nula (líquido desplazando aire). la Ley de Cox se reduce a una expresión similar a la ya mencionada Ley de Tanner, es decir, a una variación del angulo de contacto con el número capilar de la forma:

# $\theta_{\rm d} \propto {\rm Ca}^{1/3}$

Para sistemas líquido-líquido. con angulo de contacto estático distinto de cero y dinamico cercano al estático, es decir para bajos numeros capilares. la Ley de Cox deriva en una variación líneal de  $\theta$  con Ca.

Por último, y en una dirección distinta de todas las aproximaciones teóricas mencionadas. Blake y Haynes [45, 49] han propuesto que el movimiento de la línea de triple contacto está determinada por la cinética molecular de los eventos que ocurren en esta zona.

Analizan la dinámica del mojado desde un punto de vista microscópico planteando que en una interfase en reposo. la zona donde confluyen las tres fases estará, de todas maneras, en un estado de movimiento térmico vigoroso debido al intercambio constante de moléculas entre las fases.

Para que la línea de contacto se mueva en una dirección sobre la superficie solida. el número de desplazamientos moleculares en esa dirección debe ser mayor que en la contraria y las moléculas adsorbidas en sitios localizados de la interfase inicial sólido-fluido, deben ser desplazadas por moléculas del fluido desplazante.

Esto puede suceder si existe, sobre las moléculas cercanas a la interfase, una fuerza neta en la dirección del movimiento. Blake establece la vinculación con el angulo de contacto dinámico, suponiendo que esta fuerza proviene de las fuerzas superficiales no balanceadas actuantes en la línea de triple contacto. Este desbalance lo atribuye al cambio en el angulo de contacto al ponerse la interfase en movimiento. Si no existe otro tipo de disipación. la fuerza neta por unidad de longitud

$$f = \gamma (\cos \theta_{e} - \cos \theta_{d})$$

Por otra parte plantea que, en equilibrio, las constantes cinéticas que rigen el movimiento molecular en ambas direcciones son iguales:  $K^+ = K^-$ , mientras que en movimiento debe ser:

 $K^+ \rightarrow K^-$  y  $(K^+ - K^-) \propto V$ 

Utilizando la expresión habitual para las constantes cinéticas [55], Blake la modifica incluyendo en las mismas la fuerza capilar mencionada. De esta manera obtiene la siguiente expresión para la velocidad de avance de la interfase:

$$v = 2 K_{\lambda} \lambda \operatorname{senh} \left\{ \gamma \left( \cos \theta_{\lambda} - \cos \theta_{\lambda} \right) / 2 n k T \right\}$$

donde K es la constante cinética de equilibrio para el mojado,  $\lambda$  es la longitud de cada desplazamiento molecular, n es el número de sitios de adsorción que tiene el sólido por unidad de área, k es la constante de Boltzmann y T la temperatura.

Los parámetros moleculares, K ,  $\lambda$  y n, los determina ajustando los datos experimentales con la curva teórica.

La expresión obtenida por Blake se reduce a una relación lineal entre cos  $\theta$  y Ca cuando  $\theta$  es muy cercano a  $\theta_{\theta}$  (bajas velocidades) y a una relación logarítmica cuando el argumento del senh es muy grande (altas velocidades).

Blake ajusta con esta expressión sus propios datos experimentales así como los de Kennedy [46], Inverarity [48] y Burley y Kennedy [47], obteniendo una muy buena concordancia. En particular, predice el cambio de pendiente en la presión capilar (proporcional a cos  $\theta$ ), cuando  $\theta$  se acerca a  $\theta_{\mu}$ , observado por estos autores y, como se vera, observado también en las experiencias que agui se presentan.

Al respecto. Blake sugiere que existen dos mecanismos de mojado: cuando la interfase avanza sobre el sólido a velocidades

es:

suficientemente bajas. las moléculas del primer fluido adsorbidas sobre el sólido. son reemplazadas por moléculas del fluido desplazante (fig. 13 a)





Fig. 13. - Mecanismos de mojado según la teoría de Blake [45]. a) bajas velocidades, b) altas velocidades.

En cambio, a velocidades mayores que una cierta velocidad crítica, la desorción no tiene tiempo de producirse y por lo tanto, el fluido desplazante avanza sobre una monocapa de moléculas del fluido desplazado que queda atrapada (fig. 13 b). De esta manera, cambian las constantes moleculares K<sub>y</sub> y n y esto produce el cambio de pendiente en la curva de presión capilar.

Como conclusión de esta revision teórico-experimental se observa que existe una gran dispersión, tanto en los resultados experimentales como en las interpretaciones teóricas de los mismos.

El objetivo de este trabajo es, entonces, aportar nuevos datos experimentales a esta discusión, con la particularidad de que se estudia la dinámica de una interfase líquido-líquido a partir de la evaluación experimental de la presión capilar dinámica y no de la medición del ángulo de contacto.

### IV. - DISPOSITIVO EXPERIMENTAL

IV.1. - Descripción

En este punto se describen las características del equipo experimental diseñado y construído con el objeto de realizar experiencias en las cuales se pudiera medir la velocidad de avance de una interfase líquido-líquido. en el interior de un tubo capilar horizontal [56].

El dispositivo fue diseñado de tal manera que cumpla ciertos requisitos indispensables para el desarrollo de las experiencias. En particular, se buscó que el equipo posibilite:

a) regular la horizontalidad de los capilares. y poder reemplazar los mismos fácilmente al finalizar cada experiencia.

 b) utilizar uno o mas capilares de largo suficiente como para poder medir velocidades de hasta 2 cm/seg,

c) regular las presiones de entrada y salida y mantenerlas constantes durante cada experiencia,

d) que estén presentes en el sistema solamente la o las interfases en estudio.

En la fig. 14 se muestra un esquema del equipo.



Fig. 14. - Esquema del dispositivo experimental.

El mismo consta de las siguientes partes:

- 1: tubo capilar
- 2: cubeta de carga o de entrada
- 3: cubeta de descarga o de salida
- 4: plataformas regulables
- 5: superficie de acrílico con escala milimetrada

A continuación se describen las características principales de cada uno de los componentes.

IV.2. - Tubos Capilares

IV.2.1. - Mojabilidad

La elección del tipo de tubos capilares utilizados se basó en una investigación previa sobre los distintas clases de vidrio existentes en el mercado. la mojabilidad de los tubos respecto de los fluidos utilizados y la repetitividad de los resultados.

El estudio de mercado realízado mostró que se fabrican capilares de vidrio de boro-silicato y de soda-cal. El boro-silicato puede tener baja o alta (Pyrex) resistencia térmica, según el tratamiento que haya recibido.

Los capilares de soda-cal se fabrican a partir de una masilla sometida a altas temperaturas. La misma es introducida en moldes para formar tubos de mayor diámetro. Luego se calientan y se someten a un proceso de estiramiento hasta alcanzar el diametro deseado. La temperatura de trabajo es menor que la de recocido para relajar las tensiones permanentes que se forman durante el proceso de estiramiento hasta el diámetro final.

En primer lugar se chequeò la mojabilidad de ambos tipos de vidrio respecto de los fluidos a utilizar, realizando pruebas de ascenso capilar. Estas consisten en introducir verticalmente el tubo en una cubeta que contiene el fluido mas denso en su parte inferior y el mas liviano encima. El capilar se sumerge totalmente. Si el fluido que ocupa la parte inferior es mas mojante que el otro, ascenderá en el capilar por encima de la

interfase entre ambos fluidos exterior al tubo. De lo contrario descenderá.

Se observó que en los tubos de boro-silicato, la interfase interior siempre descendía respecto de la exterior. En efecto, se produce una interacción de tipo fisico-químico entre el fluido y el vidrio que hace que éste modifique sus propiedades y sea mas mojado por el fluido con el que primero estuvo en contacto.

En síntesis, con este tipo de vidrio es imposible realizar experiencias de imbibición. Por el contrario, los capilares de soda-cal no variaban su mojabilidad y además presentaron una excelente repetitividad en los resultados.

## IV.2.2. - Diámetro y Superficie Interior

Para estudiar la variación de la presión capilar con la velocidad, es necesario conocer con precisión el diámetro de los tubos capilares a utilizar. su repetitividad de uno a otro tubo y su desviación a lo largo de un mismo tubo. También, como se ha dicho, es importante que la superficie interior del capilar no presente rugosidades que alteren el movimiento de la interfase.

Los capilares utilizados tienen un diámetro medio:

## $\overline{D} = 0.110 \pm 0.004 \text{ cm}$

Este se determinó mediante la técnica de diferencia de pesadas. Se calcula, utilizando una balanza de precisión ( $\Delta m = 2.10^{-5}$  gr), la diferencia de masa entre el capilar vacío y lleno con un líquido de densidad conocida. A partír de este dato se obtiene el volumen de líquido que ocupa una longitud L del capilar y con éste, el diámetro medio.

Para estudiar la variación del diámetro a lo largo del tubo, se utilizó un método óptico. Se corta un tubo capilar en muestras de 5 cm de longítud. Se las invade con agua y se las sumerge en una cubeta conteniendo un líquido con igual índice de refracción que el vidrio del tubo capilar. Esto evita las

reflexiones en la superficie curva. Se coloca la cubeta en la platina móvil de un microscopio con ocular graduado y se mide el diámetro interior a lo largo de cada muestra.

El estudio estadístico realizado dió como resultado un diámetro medio de 0,110 cm con una desviación media de 0,003 cm, concluyéndose que la desviación media está dentro de la correspondiente a los diámetros medios medidos por el método de diferencia de pesadas.

Para conocer las condiciones de la superficie interna de los capilares utilizados, se observó la misma en un microscopio de barrido electrónico. En las figs. 15 a y b se muestran micrografías de la pared interior del tubo obtenidas con 48 y 16000 aumentos respectivamente. Aun con el máximo aumento utilizado no se observan sobre la superficie rugosidades ni imperfecciones, por lo que se concluye que las rugosidades existentes son de una escala tal que no influyen en los fenómenos macroscópicos estudiados.



Fig. 15 a.- Micrografía de la pared interior del tubo capilar con 48 aumentos.



Fig. 15 b.- Micrografía de la pared interior del tubo capilar con 16000 aumentos.

Cada capilar se utiliza una sola vez y luego se descarta para asegurar en todas las experiencias iguales condiciones iniciales en la superficie del vidrio y por lo tanto resultados reproducibles. Para evitar la posible contaminación de los extremos del capilar con las impurezas ambientes, se cortan 10 cm de cada lado antes de utilizarlo.

## IV.3. - Cubetas

Las cubetas de entrada y salida fueron construídas con planchas de acrílico transparente para poder observar la altura de fluido en las mismas. Estas alturas fijan las presiones a la entrada y a la salida del capilar.

El objetivo de la cubeta de descarga es evitar la presencia

de una interfase no deseada entre el liquido desplazado y el aire y simultáneamente poder trabajar con presiones de salida mayores que las de entrada.

Sus dimensiones son :  $9 \ge 6$  cm en la base y 12 cm de altura y están provistas de los siguientes elementos (fig. 16):



Fig. 16. - Esquema de la cubeta.

a) Válvula de desagote, colocada en la base, para poder descargarlas completamente.

b) Tubo de descarga. En las experiencias donde se utilizan tres capilares interconectados. la variación de volumen de fluido en las cubetas, provocado por el avance de la o las interfases, produce una modificación apreciable en las presiones de entrada y de salida ( $\Delta h \simeq 1 \text{ mm}$ ). Para evitar esto, se trabajó, en dichas experiencias, con entrada continua de fluido en cada cubeta y descarga del mismo a través del tubo de descarga. De esta manera, la altura del tubo, que se varía por medio de la rosca externa, fija la presión.

c) Tapas intercambiables. Tienen distinto número de

orificios de igual diametro que el diametro externo de los capilares. Las mismas se cambian segun se trabaje con uno o mas capilares. Se fijan a la cubeta por medio de tornillos y la unión se sella con un o ring. Para evitar las pérdidas entre el capilar y la taza se usa masilla plástica, de fácil colocación y remoción.

## IV.4. - Nivelacion del Sistema

Las cubetas están montadas sobre dos plataformas regulables en altura. Las mismas están unidas en su parte superior, por una plancha de acrilico en la que se apoya el capilar. Sobre la misma se coloca una escala milimetrada que permitirá determinar la posicion de la interfase.

Para asegurar la horizontalidad del sistema y evitar así los efectos gravitatorios, se coloca sobre la plancha de acrílico una cubeta con agua de longitud igual a la del capilar. Con el mismo instrumento utilizado para medir la altura de los fluidos en las cubetas de entrada y salida (ver punto IV.5), se determina la altura de agua respecto del acrílico en distintos puntos. Si esta relacion se mantiene constante, dentro de la precisión del instrumento, se puede asegurar la horizontalidad del sistema con un error de  $5.10^{-5}$  cm por cada centímetro de longitud de capilar.

Esto significa una diferencia de presión debida a efectos gravitatorios de 1 dina $/cm^2$  que resulta despreciable frente al error cometido en la medición de las presiones de trabajo.

## IV.5. - Determinación de la Presión de Trabajo

Para determinar la presion en ambos extremos del capilar se debe medir la ifferenzia de altura entre el capilar y la superficie del liquido ya que:

$$p = \rho q (\dot{n} - h)$$

donde  $h_1$  es la altura del líquido y  $h_0$  es la altura de la entrada del capilar. Pese a que las cubetas son transparentes. no es posible medir  $h_1$  directamente sobre las paredes de éstas. Esto se debe a que el menisco que se forma entre acrílico, aire y líquido es del orden de la altura de fluido utilizada en estas experiencias.

El dispositivo adoptado para medir  $h_i$  se esquematiza en la fig. 17. Consiste en un soporte que sostiene un brazo móvil en cuyo extremo libre se fija verticalmente un tubo capilar de 10 cm de largo. El brazo es regulable en altura por medio de un tornillo micremétrico.



Fig. 17.- Esquema del dispositivo utilizado para medir las alturas de los fluidos en ambas cubetas.

La altura del fluido se mide bajando, por medio del tornillo, el brazo movil hasta que se observa que el líquido invade el capilar situado en su extremo. Así, el error en la medida de h<sub>e</sub> es de 0.01 mm.

La altura  $h_o$  se toma como referencia ajustándose el cero del tornillo micrometrico a la posición en que el extremo del capilar vertical coincide con la entrada del capilar horizontal. La diferencia de presión entre la entrada y la salida del capilar involucra dos alturas, por lo tanto el error en la determinación de su valor es de 20 dinas/cm<sup>2</sup>.

## IV.6.- Determinación de la Posición de la Interfase en Función del Tiempo

Dado que las velocidades involucradas son bajas, menores que 2 cm/seg, es posible visualizar con claridad el avance de la interfase. El registro de su posición en función del tiempo se efectua al pasar la interfase por posiciones predeterminadas sobre la escala milimetrada. En ese momento, se acciona un pulsador conectado a una computadora que registra los tiempos respectivos. El error en el valor de la posición es de 0.05 cm y el correspondiente al tiempo es de 0.2 seg.

## IV.7. - Fluidos

Los fluidos utilizados fueron distintos según la etapa del trabajo. En la etapa de calibración del equipo y verificación de la repetitividad de los resultados, se hicieron experiencias de imbibición y drenaje utilizando como fluidos aire, kerosene y agua destilada. Es decir pares de fluidos de muy distinta viscosidad: kerosene y aire y de viscosidad del mismo orden: agua y kerosene.

Para el estudio de las diferencias en los tiempos de irrupción del fluido desplazante, según se trate de una imbibición o un drenaje, se trabajó con agua y kerosene, para realizaron repetir las condiciones en las que se las experiencias en medios porosos.

Para investigar la variación de la presión capilar con la velocidad, en cambio, era necesario mantener la velocidad de avance de la interfase constante durante cada experiencia. Esto se consigue utilizando fluidos de la misma viscosidad. Se usaron, entonces, agua y ciclohexano.

Las características físicas de interés de estos fluidos, que ya se han dado en la primera parte de este trabajo, se resumen en la Tabla I. Los datos coresponden a una temperatura de 15°C. Las experiencias se realizaron en un ambiente climatizado a esa temperatura. por lo que no se tienen en cuenta

las variaciones con la misma.

Fluido	Densidad (gr/cm <sup>°</sup> )	Viscosidad (cp)
Aire	0	0
Agua	1 ± 0.001	1 ± 0,001
Kerosene	0.8 ± 0.001	$1.65 \pm 0.04$
Ciclohexano	0.8 ± 0.001	1 ± 0,04

## Tabla I

Las propiedades de mojabilidad de estos fluidos. en contacto con el vidrio soda cal, son las siguientes: los tres líquidos son mas mojantes que el aire y el agua es mas mojante que el kerosene y que el ciclohexano. Las tensiones interfaciales involucradas en las experiencias realizadas son:

$$\gamma_{ker-aire} \cong 65 \text{ dinas/cm}$$
  $\gamma_{agua-ker} \cong 33 \text{ dinas/cm}$ 

$$\gamma_{agua-CH} \cong 43 \text{ dinas/cm}$$

Estos datos se dan solamente con fines comparativos ya que la tensión superficial no interviene en los cálculos a realizar para determinar la presión capilar a partir de los datos experimentales. En cambio, es necesario el orden de magnitud de la misma para estimar los parámetros característicos del sistema definidos en el punto II.3.

## V. - EXPERIENCIAS DE CALIBRACION

En este capítulo se describen y analizan los resultados de las experiencias realizadas con el objetivo de calibrar el dispositivo construído, comprobar la repetitividad de los resultados obtenidos y verificar la validez de las ecuaciones utilizadas [56].

En las mismas se utilizaron como fluídos aire, kerosene y agua y se comparan los resultados obtenidos para el sistema kerosene-aire, con los correspondientes al sistema aguakerosene.

Se utiliza un solo capilar. de  $85 \pm 0.1$  cm de longitud y las secuencias estudiadas son:

- 1) Kerosene desplazando aire (imbibición)
- 2) Agua desplazando kerosene (imbibición)
- 3) Kerosene desplazando agua (drenaje)

En primer lugar se describe la técnica experimental, luego se muestran los resultados obtenidos en las 3 secuencias mencionadas y por último se comparan y analizan dichos resultados.

V.1. - Técnica Experimental

Se corta un capilar de la longitud consignada y se introduce 5 cm aproximadamente dentro de las cubetas, a través de los orificios de las tapas. Se sellan las uniones con masilla moldeable.

Como se explicó en el punto IV.4. la parte del capilar externa a las cubetas apoya en toda su longitud sobre la superficie de acrílico. Se obtura el capilar y se procede al llenado de la cubeta de entrada. Puesto que el primer paso en la secuencia a seguir es una imbibicion de kerosene desplazando aire, la cubeta de entrada se llena con kerosene hasta una altura h, que fija la presión de entrada p<sub>e</sub>, y la cubeta de salida se deja vacía.

Se pone en funcionamiento el programa de computadora

fijándose las posiciones de lectura cada 4 cm, medidas a partir de la cubeta de entrada. Se destapa el capilar dando comienzo al avance de la interfase. Cuando ésta pasa por las posiciones prefijadas se presiona el pulsador. En un archivo de la computadora se van tabulando los pares de valores  $x_i$  (posición de la interfase) y t<sub>i</sub> (tiempo).

El primer par de valores  $(x_i, t_i)$  registrado, corresponde, entonces, a una posición ubicada a 6 cm del comienzo del capilar. En el Cap. VIII se verá que en esos 6 cm se produce un movimiento no estacionario de la interfase.

La segunda etapa de la experiencia, utilizando el mismo capilar, es una nueva imbibición: agua desplazando kerosene. Para ello, se obtura el capilar, que quedo lleno de kerosene del paso anterior, y se vierte agua en la cubeta de salida hasta la altura deseada, de acuerdo a la diferencia de presión con que se vaya a realizar el desplazamiento.

Se ajusta la altura del kerosene en la cubeta de entrada. se destapa el capilar y se toman los valores de  $x_i$  y  $t_i$  en forma análoga a la anterior, con la única diferencia de que. ahora, el desplazamiento se produce en sentido contrario.

Para realizar el último paso de la secuencia, kerosene desplazando agua, se obtura nuevamente el capilar y se agrega kerosene en la cubeta de entrada. Como se trata de un drenaje, es necesario aumentar la presión en la entrada para que éste se produzca. Se destapa el capilar y se toman los pares  $(x_i, t_i)$ correspondientes.

Con los datos obtenidos se calcula, para las 3 secuencias, el miembro derecho de la ecuación (6) y se grafica éste en función del tiempo.

Se realizaron 20 experiencias incluyendo cada uno de los procesos mencionados. En todos los casos se obtuvo excelente repetitividad en los resultados.
## V.2. - Resultados Experimentales

## V.2.1. - Kerosene Desplazando Aire

En las secuencias de kerosene desplazando aire, de todas las experiencias, se trabajó con una diferencia de presion  $\Delta p = 0$ . Esto se logra ajustando la altura de kerosene en la cubeta de entrada de tal manera que cubra exactamente el borde superior del capilar. En estas condiciones, se está en presencia de una imbibición espontanea y el movimiento de la interfase es debido exclusivamente a efectos capilares.

En la fig. 18 a se grafican los resultados obtenidos para la variación de la posición de la interfase con el tiempo. en tres experiencias.



Fig. 18 a.- Variación de la posición de la interfase con el tiempo en 3 experiencias de imbibición: kerosene desplazando aire. Δp = 0. Se observa que la velocidad de la interfase decrece a medida que el kerosene avanza en el capilar. Esta variación es concordante con lo esperado, para  $\mu_i > \mu_z$ , a partir de la ec. (4).

El valor inicial de la velocidad es 2.7 cm/seg y su valor final es 0.3 cm/seg, los correspondientes valores del numero capilar son  $Ca_{max} = 10^{-3}$  y  $Ca_{min} = 10^{-4}$ .

En este caso, como  $\Delta p = 0$  y  $\mu_2 = 0$ , la ecuación (6) se reduce a:

$$\int_{0}^{t_{i}} p_{c}^{d} dt = \frac{16 \mu_{i} x_{i}^{2}(t)}{D^{2}}$$
(8)

Utilizando los datos experimentales  $(x_i, t_i)$  se calcula la variación con el tiempo del miembro de la derecha de la ecuación (8), al que se llamará A(t). En la fig. 18 b se muestran los resultados obtenidos para las tres experiencias de la fig.18 a. Como puede observarse, las curvas pueden ser aproximadas por una recta y por lo tanto, de acuerdo con (8),  $p_c^d$  tiene un valor constante en este rango de velocidades, igual a la pendiente de la recta

La pendiente media es, para todas las experiencias:

 $p_{c}^{d} = 1220 \pm 30 \text{ dinas/cm}^{2}$ 

Para verificar este resultado se hizo una regresión polinomial de segundo orden y se compararon los valores de las pendientes correspondientes al comienzo y al final de las curvas analizadas. El orden de magnitud de la variación en las pendientes relativas es de 5,0  $\pm$  0.5 dinas/cm<sup>2</sup> dependiendo de las curvas.

En consecuencia, no puede aun extraerse ninguna conclusión acerca de la variación de la presión capilar con la velocidad. Puede, sin embargo, fijarse un limite máximo a esta variación de alrededor de 150 dinas/cm<sup>2</sup>.



Fig. 18 b. - Variación de A con el tiempo para 3 experiencias de imbibición: kerosene desplazando aire.  $\Delta p = 0$ .

Es significativo comparar este valor con el de la presión capilar estática  $p_c^{\bullet}$ . Esta se determino sumergiendo verticalmente un tubo capilar en kerosene y midiendo el ascenso capilar del menisco una vez que este alcanza la altura de equilibrio. El valor obtenido fue  $p_c^{\bullet} = 1330 \pm 50$  dinas/cm<sup>2</sup>, aproximadamente 10% mayor que  $p_c^{d}$ .

#### V.2.2- Agua Desplazando Kerosene

Este segundo conjunto de experiencias se realizo también a  $\Delta p = 0$ . Esto se logra ajustando las alturas de agua (h<sub>a</sub>) y de kerosene (h<sub>k</sub>), de manera tal que:

$$h_a = \frac{\rho_k}{\rho_a} h_k$$

En la fig. 19 a se muestra la variación de la posición de la interfase con el tiempo para 4 experiencias. La curvatura de x(t) es inversa y mucho menor que en el caso de kerosene desplazando aire. Esto es consistente con la ec. (4) teniendo en cuenta que ahora es  $\mu_1 < \mu_2$  y que  $|\mu_1 - \mu_2|$  es menor en este caso que en el anterior.



Fig. 19 a.- Variación de la posición de la interfase con el tiempo en 4 experiencias de imbibición: agua desplazando kerosene.  $\Delta p$  = 0.

La velocidad de la interfase aumenta de 0.08 cm/seg (Ca =  $3.10^{-5}$ ) a 0.13 cm/seg (Ca =  $4.10^{-5}$ ) a medida que el agua desplaza al kerosene.

En la fig. 19 b se ha graficado la variación de A(t) con el tiempo para las mismas experiencias.



Fig. 19 b.- Variación de A con el tiempo para 4 experiencias de imbibición: agua desplazando kerosene.  $\Delta p = 0$ .

Como en el caso anterior. se realizo con los datos obtenidos una regresión lineal y una cuadrática. El valor de la presión capilar dinámica promediado sobre todas las curvas es:

$$p_c^d = 212 \pm 5 \text{ dinas/cm}^2$$

La variación de  $p_c^d$  entre el comienzo y el final de una curva es pequeño (aproximadamente 40 ± 8 dinas/cm<sup>2</sup>) a pesar de que su valor relativo es mayor que en el caso anterior.

También en este caso, es demostrativo comparar este valor de la  $p^d$  con el valor de la presión capilar estática. Para medir

ésta última, se pueden usar dos métodos. El primero consiste en medir el ascenso capilar con el tubo totalmente sumergido en forma vertical en un recipiente conteniendo agua en la parte baja y kerosene encima. La altura debe medirse a través del capilar, el fluido que lo rodea y el recipiente; una medición en estas condiciones no podía realizarse con suficiente precision.

El segundo método, que fue el utilizado. consiste en hacer avanzar agua desplazando kerosene en un tubo horizontal y aumentar lentamente la presión de salida. agregando kerosene en la cubeta de descarga, hasta la detención total del menisco. La  $p_c^{\bullet}$  es, entonces, la diferencia de presión entre la salida (presión en el fluido desplazado) y la entrada (presión en el fluido desplazante). De esta manera se obtuvo el valor:

$$p_{c}^{\bullet} = 550 \pm 50 \text{ dinas/cm}^{2}$$

Como se ve, el valor hallado para la presión capilar dinámica. con la interfase moviéndose en el rango de velocidades indicado, es un 60% menor que su valor estático. Esto indica. o bien una discontinuidad en la presión capilar, o un crecimiento muy abrupto de la misma cuando la velocidad se acerca a 0.

#### V.2.3- Kerosene Desplazando Agua

Como se dijo en el punto II.3, en un proceso de drenaje. la velocidad de la interfase es menor que en un flujo monofásico en iguales condiciones de presión externa.

De esto se desprende que no solo es imposible obtener drenajes con  $\Delta p = 0$  sino que es necesario aplicar una diferencia de presión mayor que la presión capilar del sistema.

En todas las experiencias de drenaje realizadas, se aplico una diferencia de presión  $\Delta p = 1800$  dinas/cm<sup>2</sup>. Esto se logra ajustando las alturas de agua y kerosene de manera tal que:

1800 dinas/cm<sup>2</sup> = g (
$$\rho_a h_a - \rho_k h_k$$
)

En las figs. 20a y 20b se muestran los graficos de x(t) y A(t) en función del tiempo, para tres de las experiencias realizadas.



Fig. 20 a. – Variación de la posición de la interfase con el tiempo en 3 experiencias de drenaje: kerosene desplazando agua.  $\Delta p = 1800 \text{ dinas/cm}^2$ .

La curvatura de x(t) es nuevamente concordante con la ec. (4). para  $\mu_1 > \mu_2$ . El rango de velocidades obtenido es de 0.25 cm/seg a 0.4 cm/seg, lo que corresponde a valores de Ca algo superiores que en las experiencias anteriores (Ca<sub>máx</sub> = 8.10<sup>-9</sup>, Ca<sub>máx</sub> = 5.10<sup>-9</sup>).

Las curvas A(t) son analizadas como en los casos anteriores, obteniendo el valor medio de  $p_c^d$  a partir de una regresión lineal:

$$p_c^d = -920 \text{ dinas/cm}^2$$

El signo menos en la presión capilar es consistente con la definición adoptada: la presión. a uno y otro lado de la interfase. es menor en el fluido desplazado gue en el desplazante.



Fig. 20 b.- Variación de A con el tiempo para 3 experiencias de drenaje: kerosene desplazando agua.  $\Delta p = 1800 \text{ dinas/cm}^2$ .

Cuando se ajustan las curvas con un polinomio de segundo orden se obtiene que la variación relativa de la  $p_c^d$  entre los extremos de las curvas es menor que 100 ± 10 dinas/ cm<sup>2</sup>.

En este sistema la presión capilar estática es la misma que en el anterior ya que se trata de los mismos fluidos, por lo que se observa que, también en este caso, hay una diferencia del 60% entre el valor absoluto de  $p_c^d$  y  $p_c^e$ .

# V.3. - Discusión de los Resultados

La experiencias descriptas permitieron en primer lugar, calibrar el dispositivo experimental ajustando los distintos componentes de manera de lograr un manejo sencillo y estandard de los mismos.

Asimismo, mediante la repetición de experiencias en condiciones idénticas, se verífico la repetitividad de los resultados estableciéndose así, la confiabilidad de la técnica.

Por otra parte, los resultados obtenidos en el sistema líquido-gas (kerosene-aire), concuerdan satisfactoriamente con los hallados por Hoffman [21]. Efectivamente, en el rango de velocidades analizadas (0,3 cm/seg a 2.7 cm/seg), Hoffman tampoco ha detectado varíación en el ángulo de contacto. Como se puede ver en la fig. 10. para Ca entre  $10^{-4}$  y  $10^{-9}$ , Ca +  $f(\theta)$ varía sólo de 1,1.10<sup>-9</sup> a 2.10<sup>-9</sup> y  $\theta$  aumenta en 1° ó 2° respecto de su valor inicial. Este leve aumento de  $\theta$  resulta en una variación despreciable de la presión capilar.

Los resultados obtenidos en los sistemas líquido-líquido, agua desplazando kerosene y viceversa. también muestran valores constantes de la presión capilar en el rango de velocidades estudiado, lo que concuerda con los resultados de Fermigier [24] (fig. 11). Sin embargo, la gran diferencia encontrada entre la presión capilar estática y la presión capilar dinámica en ambos casos, sugiere, como se dijo mas arriba, que la presión capilar tiene una discontinuidad o bien que la misma crece abruptamente cuando la velocidad se acerca a 0.

Que este hecho no se presente en el sistema líquido-gas, donde la diferencia entre las presiones capilares estática y dinámica es de solo el 10%, es una señal importante respecto de la posibilidad de que haya características cualitativamente distintas entre uno y otro sistema.

Estos resultados se vuelven a discutir en el Cap. VI. En el mismo se describen las experiencias que permitieron obtener la variación de la presion capilar dinámica con la velocidad para un amplio rango de números capilares.

## VI. - SISTEMAS INTERCONECTADOS

El objetivo de las experiencias descriptas en este capítulo es analizar, mediante un modelo simple. el comportamiento de las interfases en un sistema interconectado. En particular, interesa investigar el fenomeno observado durante las experiencias de desplazamientos en medios porosos (Cap.V, parte A), dadas las características distintas que presenta la irrupción del fluido desplazante, según se trate de una imbibición o de un drenaje.

El hecho observado es que si se trata de una imbibición, el líquido desplazante no emerge del medio cuando llega a la cara de salida, sino que lo hace mucho después: cuando su saturación ha llegado al valor máximo a lo largo de todo el lecho. Es decir que, una vez producida la irrupcion del líquido desplazante, el desplazado deja de emerger del medio, por lo que, a partir de ese momento, el proceso se limita a inyectar el fluido mas mojante por un extremo y recoger el mismo líquido por el otro.

Si se trata de un drenaje, en cambio, el líquido desplazante emerge del medio inmediatamente después de haber llegado a la cara de salida, dejando una considerable cantidad de líquido desplazado en el interior del mismo. Tal es así, que si se continua la inyección de fluido no mojante, se observa que durante largo tiempo se producen las dos fases.

Este fenómeno es de gran interés en la industria del petróleo [57,58]. La fig. 21 muestra esquemáticamente la recuperación de petróleo por inyección de agua para dos casos de mojabilidad [59].

Se observa que cuando el petróleo es mas mojante a la roca que el agua, el desplazamiento resulta altamente ineficiente ya que requiere de grandes volumenes de agua de inyección y de un largo tiempo hasta llegar a una relación agua-petróleo que resulte antieconómica. Por el contrario cuando el agua es el fluido mas mojante, la recuperación de petróleo al momento de la irrupción es considerablemente mayor e inmediatamente después disminuye su producción.



Fig. 21.- Porcentaje de recuperación de petróleo en función del número de volumenes porales de agua inyectado, para rocas de distinta mojabilidad [59].

Kyte [60], realiza una interpretación cualitativa de las diferencias antes descriptas en base a la distribución de presiones en el límite del pozo de producción, o lo que es lo mismo, en la cara de salida del medio poroso. Esta descripción, sin embargo, lo lleva a suponer que en el caso de una imbibición. el líquido desplazante se acumula en dicha cara, con lo que habría una saturación de agua mayor en las posiciones cercanas a la salida que en el interior del medio poroso.

Los resultados de las experiencias descriptas en el Cap V de la parte A de este trabajo (figs. 16, 17 19 y 20) muestran que la distribución de agua, al momento de la irrupción, no es la supuesta por Kyte, sino que es uniforme a lo largo de todo el lecho.

Las experiencias desarrolladas en este capítulo [61] están orientadas, entonces, al análisis de estos fenómenos utilizando

el dispositivo descripto en el punto III.1, con tres capilares interconectados.

V.1. - Dispositivo Experimental

El dispositivo experimental utilizado en estas experiencias es el mismo que el descripto en el punto III.1. pero levemente modificado para permitir el uso de tres capilares interconectados por medio de un nodo, como se muestra en la fig. 22.



Fig. 22.- Dispositivo experimental utilizado en las experiencias con capilares interconectados.

La superficie de acrílico sobre la cual apoyan los capilares fue acondicionada para dar lugar al nodo y se uso una tapa con dos orificios en la cubeta de salida.

También fue necesario instrumentar un mecanismo para mantener constante la altura de los fluidos en las cubetas durante la experiencia. En este caso, el volumen de líquido que se desplaza no permite despreciar la disminución de altura en la cubeta de entrada y el aumento en la de salida.

Esto se resolvió poniendo en cada cubeta un flujo continuo del líquido correspondiente, con caudal levemente mayor que el que circula por el sistema. El líquido sobrante se derrama por el tubo de descarga que actúa, entonces, de regulador de la presión.

El diseño y el material con el que se construyeron los nodos, que al igual que los capilares se usan una sola vez y luego se descartan. demando una serie de ensayos previos hasta llegar al modelo definitivo. Su enumeracion sucinta ayuda a describir el rol que juega el nodo en el desplazamiento de las interfases.

En un primer intento se construyeron los nodos con acrilico pues es un material sencillo de maquinar. Sin embargo, éste debió deshecharse ya que se observó que la diferente mojabilidad de los fluidos utilizados, respecto del vidrio del capilar y del acrílico del nodo, modificaba sustancialmente el desplazamiento de la interfase. El acrílico es mas mojado por el kerosene que por el aqua a la inversa de lo que ocurre con el vidrio.

Se decidió, en consecuencia, utilizar vidrio soda cal para construirlos. El primer diseño utilizado se muestra en la fig. 23.



Fig. 23. - Diseño tipo ampolla de los nodos.

Estas ampollas, de construcción sencilla y volumen pequeño frente al volumen total del sistema, permiten introducir un capilar en una de sus aberturas y dos en la otra. sellándose las uniones con masilla plástica. El inconveniente de este diseño es el cambio abrupto en el diámetro entre el capilar y el nodo. Esto provoca una brusca disminución en la presión capilar que altera el avance de la interfase.

En definitiva, los nodos se construyeron utilizando dos placas de vidrio que apoyan una sobre otra. Ambas tienen canales

una sobre otra. Ambas tienen canales grabados, tal como se muestra an la fig. 24, donde se colocan los tres capilares.



Fig. 24. - Diseño definitivo de los nodos.

Una vez apoyada una placa sobre la otra, los canales de entrada y salida tienen un diámetro igual al diámetro externo de los capilares (2 mm) y el canal que los conecta tiene igual diámetro que el diámetro interno de los tubos (1 mm). La unión entre las placas se sella, después de colocar los capilares, con masilla plástica.

El grabado se hizo con ácido fluorhídrico. Para efectuarlo se adhiere a las placas de vidrio un papel con el mismo diseño que los canales. Luego, se cubren con parafina y se retira la cinta de papel, quedando así libre la parte de la superficie de vidrio que se expondrá al ácido fluorhídrico (proceso de enmascaramiento).

#### V.2. - Resultados Experimentales

La técnica utilizada para estas experiencias es totalmente análoga a la descripta en el capítulo anterior. La longitud de los capilares es  $25 \pm 0.1$  cm. Una vez colocados en el nodo y sellado el mismo, se ubican entre las cubetas de manera que a la entrada del sistema quede un capilar y a la salida dos.

Se observa que al destapar el capilar de entrada, la interfase avanza en este y llega al nodo invadiendolo. Luego entra aleatoriamente en alguno de los dos capilares de salida. Habiendo recorrido una distancia d en ese capilar, entra en el otro y avanza por ambos simultaneamente.

Durante la corrida se toman los pares de valores  $(x_i, t_i)$ correspondientes al capilar de entrada, y luego los correspondientes a cada uno de los capilares de salida.

Se realizaron experiencias de imbibición y drenaje. A continuación se describen sus resultados que se discutirán en el último punto de este capítulo.

## V.2.1. - Imbibiciones

Durante las experiencias de imbibición se estudiaron los ciclos siguientes: kerosene desplazando aire y agua desplazando kerosene. En ambos casos se trabajó con  $\Delta p = 1,2 p_c$ , donde  $p_c$  se tomó igual al valor de la presión capilar dinámica obtenido para cada par de fluidos, en las experiencias descriptas en el capítulo anterior.

Los resultados obtenidos para ambos casos se muestran en las figs. 25 y 26. En ellas se grafica la posicion de la interfase en función del tiempo. La curva representada por cículos llenos corresponde al avance del menisco dentro del capilar de entrada y las representadas por cruces y equis, al avance en el capilar de salida (1) y (2) respectivamente.

En las experiencias de kerosene desplazando aire (fig. 25), la interfase avanza en el capilar de entrada a velocidad decreciente  $(\mu_i > \mu_2)$ , en cambio, en el caso de agua desplazando kerosene (fig. 26), la velocidad aumenta  $(\mu_i < \mu_2)$ .

En los gráficos se puede ver que la separación d entre las interfases de los capilares de salida varía a medida que éstas se desplazan, de acuerdo con la relación de viscosidades de ambos fluidos. En el primer caso disminuye y en el segundo aumenta.



Figs. 25 y 26.- Variación de la posición de la interfase con el tiempo en experiencias de imbibición. Sistema de 3 capilares interconectados, fig. 25: kerosene desplazando aire, fig. 26: agua desplazando kerosene.

Cuando la interfase que va adelante llega a la salida del capilar, cesa el flujo en dicho capilar y simultaneamente se acelera en el otro. Recién cuando la segunda interfase llega también a la salida se observa que el agua emerge por ambos capilares, produciéndose así el fenómeno de "breakthrough" o irrupcion del fluido desplazante.

Es decir, se repiten las características esenciales de la irrupción del fluido mojante observadas en medios porosos.

V.2.2. - Drenajes

Los resultados obtenidos en las experiencias de drenaje, kerosene desplazando agua, se muestran en la fig. 27.



Fig. 27.- Variación de la posición de la interfase con el tiempo en una experiencia de drenaje, kerosene desplazando agua, en el sistema de 3 capilares interconectados. Las experiencias se realizaron a  $\Delta p = 1.5 p_c$ , donde  $p_c$  se tomó igual al valor obtenido para este sistema, en las experiencias descriptas en el capítulo anterior.

En este caso, la velocidad de la interfase es decreciente  $(\mu_i > \mu_2)$ . Una vez invadido el nodo, el kerosene entra en cualquiera de los dos capilares de salida recorriendo una distancia d en uno de ellos antes de entrar en el otro. Esta distancia aumenta a medida que las interfases avanzan en los tubos de salida (en forma análoga al caso de una imbibición de agua desplazando kerosene).

En el momento en que la primer interfase alcanza la salida. el kerosene emerge de ese capilar y simultaneamente se detiene el flujo en el otro. Esta es la diferencia sustancial con lo que ocurre durante una imbibición y nuevamente se repite lo observado en las experiencias de drenaje en medios porosos.

# V.3. - Discusión de los Resultados

Utilizando las ecuaciones para tres capilares interconectados que se discutieron en el punto II.2.4, es posible explicar los resultados experimentales descriptos.

En las figs. 28 y 29 se muestran secuencias de gráficos donde se representa la distribución de presiones resultante de dichas ecuaciones, para los casos de imbibición y drenaje respectivamente. Las secuencias tienen orden creciente en el tiempo y en cada una de ellas se indica la correspondiente posición del o los meniscos.

La presión de salida se ha tomado en ambos casos como referencia y los valores de las presiones de entrada son concordantes con los  $\Delta p$  utilizados durante las experiencias. Para simplíficar los gráficos se han supuesto iguales 100 viscosidades de los fluidos. que esto no cambia ya los resultados que interesa discutir. También se ha supuesto que el líquido desplazante recorre una distancia d = L/2 en el capilar (1) antes de entrar en el capilar (2).

El proceso de imbibición se muestra en la fig. 28.



Fig. 28. - Secuencia de la distribución de presiones a medida que avanzan las interfases, para el caso de una imbibición.

El perfil de presiones en el capilar (1) se representa en línea punteada y en el capilar (2) en línea llena. Cuando la primera no aparece significa que los perfiles en ambos capilares son iguales.

Las secuencias a y b muestran como se modifica la distribución de presión al avanzar la interfase en el capilar de entrada. En la c y la d se muestra la situación antes y después que el nodo ha sido invadido. Observese que la presión de nodo cambia de una a otra situación.

En la secuencia e el fluido desplazante ha recorrido L/2 en el capilar (1) y aún no ha invadido el capilar (2). En la f, la interfase del (1) ya llegó al extremo y la del (2) se encuentra en L/2.

En ese momento desaparecen los efectos capilares en el menisco del tubo (1), la presión a la izquierda de esa interfase se iguala a la de salida, el menisco se deforma aplanándose y queda adherido a los bordes del capilar, cesando el flujo por el mismo. Como consecuencia, el sistema se comporta como un único capilar de longitud 2L (secuencia g). Esto, a su vez, tiene dos efectos: el aumento de la presión de nodo y de la velocidad del menisco en el tubo (2) (comparar f y g).

El aumento en la presión de nodo produce una aumento de la presión a la izquierda de la interfase del tubo (1). Ya que por ese capilar no hay flujo ambas presiones deben ser iguales. Esto hace que el menisco se deforme mas, pudiendo incluso cambiar su curvatura, quedando con su cara convexa hacia el exterior (secuencia g).

Cuando la interfase en el tubo (2) llega al extremo de su capilar, el proceso se repite y el flujo cesa totalmente. Todo el sistema se encuentra a la presión de entrada (secuencia h). Si ésta es suficiente para vencer las fuerzas de adhesión de los meniscos en los extremos de los tubos, el flujo se recupera en ambos capilares produciéndose la irrupción del líquido desplazante. Si no lo es, imbibición espontánea por ejemplo ( $\Delta p$ = 0), el sistema queda en equilibrio y el fluido desplazante no emerge del mismo.

El proceso de drenaje se representa en la fig. 29. Las secuencias son las mismas que en el caso anterior.



Fig. 29.- Secuencia de la distribución de presiones a medida que avanzan las interfases, para el caso de un drenaje.

La diferencia con una imbibición es lo que ocurre al llegar una de las interfases al extremo del capilar (fig. 29 f). También en este caso desaparecen los efectos capilares en ese tubo con lo que la presión a la izquierda de esa interfase se iguala a la presión de salida. Pero, en este caso, la presión en el nodo es mayor que la de salida por lo que es suficiente para vencer los efectos de adhesión del menisco y el líquido desplazante emerge del capilar.

Se produce, entonces, flujo monofásico por el mismo, con la distribución de presiones mostrada en la secuencia g, donde se ve que la presión de nodo disminuye y el caudal aumenta respecto de la secuencia anterior.

Con la relación entre la presión de entrada y la presión capilar utilizada. la presión de nodo ya no es suficiente para vencer la presión capilar en la interfase del otro tubo y ésta se detiene (fig. 29 g). De esta forma el fluido comprendido entre esta interfase y la salida queda atrapado.

Si la relación entre presiones externas y presión capilar, fuera mayor, la interfase en el segundo capilar seguiría avanzando y emergerían del medio ambos fluidos simultaneamente.

El sistema descripto, de tres capilares interconectados, modeliza de manera simple una posible distribución de poros y canales en el interior de un medio poroso. Las cubetas de entrada y salida simulan dos poros y el nodo representa una bifurcación en los canales que los unen.

El desarrollo anterior explica porqué en una distribución de este tipo, no queda fluido entrampado en una imbibición y sí en un drenaje y también explica porqué, en una imbibición, el fluido desplazante no emerge del sistema cuando llega a la salida sino que lo hace cuando lo ha saturado totalmente. En cambio en un drenaje, el fluido desplazante emerge inmediatamente de haber llegado a la salida y que lo haga simultaneamente con el desplazado depende de la relación entre las presiones externas y la presion capilar.

Por supuesto, no es exactamente esto lo que ocurre en un medio poroso real, ya que el mismo presenta una variada distribución de poros, canales y bifurcaciones.

En la fig. 30 se muestra, a modo de ejemplo, otra configuración a la que se puede aplicar el mismo tratamiento. En este caso, el fluido desplazado queda atrapado tanto en una imbibición, secuencia a, b, c; como en un drenaje (a', b', c').



Fig. 30.- Ejemplo de una configuración en la cual el fluido desplazado queda entrampado durante una imbibición (a, b, c) y durante un drenaje (a', b', c').

La proporción de fluido entrampado en un medio poroso real, depende obviamente de la intrincada geometría del medio, pero cualquiera sea ésta. el análisis realizado permite afirmar que existen configuraciones en las que no queda fluido desplazado atrapado durante una imbibición y sí durante un drenaje. Por el contrario, no existen configuraciones donde en un drenaje no quede fluido desplazado atrapado y sí quede en una imbibición.

Esto hace que la probabilidad de entrampamiento sea mayor durante un drenaje que durante una imbibición. Análogamente, como la cara de salida de un medio poroso real se comporta como un poro, el análisis realizado explica porqué. en un drenaje, la irrupción del desplazante se produce siempre habiendo inyectado menor cantidad de fluido que en una imbibición.

# VII. - SISTEMAS CON UN CAPILAR - VARIACION DE LA PRESION CAPILAR CON LA VELOCIDAD

El objetivo de las experiencias desarrolladas en este capítulo es investigar la variación de la presión capilar con la velocidad de la interfase [62]. Para ello es necesario que, durante cada experiencia, la velocidad de la interfase se mantenga constante, independientemente de su posición dentro del tubo capilar.

De esta manera, para cada ∆p aplicado a los extremos del tubo, se obtiene una única velocidad resultante y con estos dos datos se calcula la correspondiente presión capilar.

Tal como se vió en el par. II.2.3, se consigue que la velocidad de la interfase sea independiente de la posición usando dos líquidos de la misma viscosidad, de modo que las caídas de presión por viscosidad sean iguales a uno y otro lado de la interfase. En ese caso puede usarse la ec. (7):

$$p_{c}^{d} = 32 \frac{\mu L}{D^{2}} \frac{dx}{dt} - \Delta p$$

Los fluidos utilizados fueron agua y ciclohexano cuyas características físicas se han dado en la Tabla I del Cap. IV.

El dispositivo experimental es el descripto en el punto IV.1 y se utilizaron capilares de  $85 \pm 0.1$  cm de longitud con dos condiciones iniciales diferentes: secos y premojados.

Se llama tubos secos a aquellos que han sido inicialmente saturados con el fluido menos mojante (ciclohexano). Tubos premojados son aquellos a los que inicialmente se los ha saturado con el fluido mas mojante (agua).

El objetivo de trabajar con estos dos tipos de capilares es comparar los resultados y estudiar, así, la influencia sobre la dinámica de la interfase, del film de agua remanente sobre las paredes del tubo premojado.

La secuencia seguida para realizar las experiencias en sistemas con un capilar seco es la siguiente: 1) llenado del capilar con ciclohexano.

2) desplazamiento del ciclohexano con agua (imbibición).

Para experiencias con un capilar premojado la secuencia es: 1) llenado del capilar con agua,

2) desplazamiento del agua con ciclohexano (drenaje),

3) desplazamiento del ciclohexano con agua (imbibición).

La técnica utilizada para efectuar estas experiencias y obtener los pares de valores  $(x_i, t_i)$  es la misma que la desarrollada en el punto V.1.

La presión capilar estática se determino, para ambos tipos de tubos, con el método descripto en el par. V.2.1.. El mismo consiste en hacer avanzar agua desplazando ciclohexano en un tubo horizontal. Se aumenta lentamente la presión de salida, agregando ciclohexano en la cubeta de descarga, hasta la detención total del menisco. La  $p_c^{*}$  es, entonces, la diferencia entre la presión de salida y la presión de entrada.

## VII.1. - Resultados Experimentales

Se mostrarán a continuación los resultados obtenidos para los procesos de imbibición y drenaje estudiados. En primer lugar se describen los correspondientes a imbibiciones en tubos secos, y luego los correspondientes a imbibiciones y drenajes en tubos premojados. En todos los casos se evalúa la variación de la presión capilar con la velocidad de avance de la interfase. Los resultados se discuten en el último parágrafo del capítulo.

#### VII.1.1. - Imbibición en Capilares Secos

Para que el rango de velocidades resultantes fuera suficientemente amplio se realizaron experiencias de imbibición forzada (presión de entrada, p. mayor que la de salida, p.), imbibición espontanea (p. = p.) e imbibición inhibida (p. < p.).

Para cada gradiente de presión se realizaron tres experiencias obteniendo resultados repetitivos.

En la fig. 31 se muestran la variación de la posición de la interfase con el tiempo en tres experiencias realizadas a  $\Delta p$  =

1200 dinas/cm<sup>2</sup>. Como puede observarse las curvas se superponen y son bien ajustadas por una recta indicando que la velocidad es constante. Se verifica de esta manera que las viscosidades de ambos fluidos son iguales y que se está trabajando en condiciones de régimen estacionario.



Fig. 31.- Posición de la interfase en función del tiempo para tres experiencias de imbibición en tubo seco,  $\Delta p = 1200$  dinas/cm<sup>2</sup>.

En la fig. 32 se grafica la posición de la interfase en función del tiempo para cuatro experiencias independientes con distintos valores de diferencia de presión externa aplicada.

De las pendientes de estas rectas se obtienen las velocidades resultantes para cada diferencia de presión aplicada  $(\Delta p)$ . Con estos datos y utilizando la ec.(7), se determina el valor de la presión capilar dinámica correspondiente a cada velocidad.



Fig. 32. - Posición de la interfase en función del tiempo para cuatro experiencias de imbibición en tubos secos. (A)  $\Delta p = 5000$  dinas/cm<sup>2</sup>, (B)  $\Delta p = 2500$  dinas/cm<sup>2</sup>, (C)  $\Delta p = 1200$  dinas/cm<sup>2</sup>, (D)  $\Delta p = 50$  dinas/cm<sup>2</sup>.

En la fig. 33 se grafican los valores de presión capilar dinámica obtenidos, en función de la velocidad; mientras que en la fig.34 se representan los mismos resultados en función del número capilar, para independizarlos de los valores de  $\mu$  y de  $\gamma$ , y en escala semilogarítmica para poner de manifiesto sus características principales.

En este ultimo grafico puede observarse que la presión capilar dinámica presenta tres comportamientos diferentes:

- Para Ca  $> 10^{-4}$  la presión capilar dinámica decrece marcadamente con el incremento de velocidad y hasta puede tomar valores negativos. Se obtienen valores de presión capilar

dinámica tan bajos como -600 dinas/cm<sup>2</sup> (los valores negativos en la presión capilar dinámica significan que la curvatura del menisco se invirtió con respecto de su curvatura a velocidad nula).



Fig. 33.- Variación de la presión capilar con la velocidad en procesos de imbibición en tubos secos.

- Para valores de Ca comprendidos entre  $10^{-4}$  y $10^{-5}$  (velocidad entre 0.03 y 0.02 cm/seg) la presión capilar dinámica mantiene un valor aproximadamente constante.

- Para muy bajas velocidades. Ca  $< 10^{-5}$ , se observa un abrupto aumento en los valores de la presión capilar dinámica a medida que la velocidad disminuye. Estos valores aumentan en forma continua tendiendo hacia el valor de presión capilar estática: 370 ± 20 dinas/cm<sup>2</sup>.

Para mayor claridad de las figuras no se han representado

las barras de error de la presión capilar dinámica. Las mismas, calculadas a partir de la ecuación (7) varían entre el 5% para las velocidades mas bajas y el 15% para las mas altas.



Fig. 34.- Variación de la presión capilar dinámica con el logaritmo del número capilar en procesos de imbibición en tubos secos.

Estos resultados serán discutidos. junto con los siguientes, al final del capítulo.

## VII.1.2. - Imbibición en Capilares Premojados

También en este caso se realizaron imbibiciones forzadas, espontáneas e inhibidas. y para cada gradiente de presión se obtuvieron resultados repetitivos. En la fig. 35 se muestran las curvas correspondientes a cuatro experiencias realizadas a diferentes presiones aplicadas.



Fig. 35. - Posición de la interfase en función del tiempo para cuatro experiencias de imbibición en tubos premojados. (A)  $\Delta p = 5000 \text{ dinas/cm}^2$ , (B)  $\Delta p = 3500 \text{ dinas/cm}^2$ , (C)  $\Delta p = 1200 \text{ dinas/cm}^2$ , (D)  $\Delta p = 800 \text{ dinas/cm}^2$ .

Puede observarse que también en este caso la velocidad se mantiene constante durante el desarrollo de la experiencia.

La diferencia mas significativa con el caso anterior es que, para el mismo gradiente de presion. la velocidad obtenida en un tubo premojado es mucho mayor que la obtenida para un tubo seco. Esto se ve en la fig. 36. donde se han representado en el mismo grafico los resultados de dos experiencias. una con un tubo seco y la otra con uno premojado, realizadas a la misma diferencia de presion.

Resulta evidente. entonces, que los efectos capilares son mayores en el caso en que la pared interior del tubo está recubierta por una película del fluido mas mojante, en este caso el agua.



Fig. 36.- Posición de la interfase en función del tiempo para una experiencia de imbibición en tubo seco (B) y otra en tubo premojado (A), ambas realizadas a ∆p = 1200 dinas∕cm<sup>2</sup>.

Igual que en el caso anterior, con los valores del gradiente de presión aplicado y de la velocidad, se calcula la presión capilar dinámica.

En la fig. 37 se grafica la variación de la presión capilar dinámica con el número capilar, para procesos de imbibición en En tubos premojados (curva B). la misma | figura se han los valores áe – presion capilar dinamica para superpuesto imbibición en tubos secos (curva A). Se ve que para todas las velocidades. los valores de  $p_c^d$  son mayores en el caso de tubos premojados que en el caso de tubos secos.



Fig. 37.- Variación de la presión capilar dinámica con el número capilar para experiencias de imbibición. (A): en tubos secos, (B): en tubos premojados.

A pesar de que en este caso los valores presentan una mayor dispersión, no se observan cambios significativos en los valores de presión capilar dinámica para Ca  $> 10^{-4}$ . Aun para los mayores gradientes de presión utilizados. el menisco conserva la curvatura propia de una imbibición espontanea, no obteniéndose valores de presión capilar negativos.

Sin embargo, y analogamente al caso anterior, los valores de  $p_c^d$  aumentan hacia el valor correspondiente a la presión capilar estática a medida que la velocidad disminuye. Observese que este nuevo valor de  $p_c^{e} = 820 \pm 20$  dinas/cm<sup>2</sup>, es también mucho mayor.

Por último, debe señalarse que este incremento en los valores de  $p_c^d$  se produce para valores de Ca <  $10^{-4}$ . es decir, para valores de Ca un orden de magnitud mayores que con la utilización de tubos secos.

VII.1.3. - Drenaje en Capilares Premojados

Las experiencias de drenaje corresponden por definición al caso de tubos premojados ya que el tubo capilar es saturado con agua antes de la inyección de ciclohexano.

De acuerdo a la definición de presión capilar:

$$p_c^d = p_2 - p_1$$

y a la curvatura de un menisco para un drenaje (fig. 7) se ve que los valores de presión capilar dinámica son negativos. Esto indica que sólo habrá flujo si la presión de entrada supera a la de salida en un valor mayor al de la presión capilar dinámica.

Igual que en los dos casos precedentes, se determino la velocidad de avance de la interfase para distintos gradientes de presión y con estos valores de velocidad, se obtuvieron los correspondientes valores de la presión capilar dinámica.

En la fig. 38 se grafican los resultados obtenidos para este caso, superpuestos con los resultados anteriores. En el caso de drenaje se ha tomado el modulo de los valores de la presión capilar para remarcar que, cuando la velocidad tiende a cero, la presión capilar tiende a un mismo valor, tanto si se trata de una imbibición en tubo premojado como de un drenaje. El valor común al que tienden, es el de la presión capilar estática para tubos premojados  $p_{e}^{\circ} = 820 \text{ dinas/cm}^{2}$ .

A pesar de que los resultados para drenaje también presentan un grado mayor de dispersión que los de imbibición en tubos secos, puede observarse claramente que tienen una tendencia levemente creciente con la velocidad y que esta curva y la obtenida para imbibición en tubos premojados resultan simétricas respecto de la  $p^{e}$  correspondiente.



Fig. 38.- Variación de la presión capilar dinámica con el número capilar para experiencias de imbibición en tubo seco (A), e imbibición (B) y drenaje (C) en tubo premojado.

## VII.2. - Discusión de los Resultados

Las principales características de los resultados obtenidos son las siguientes:

- Los valores que se obtienen para la presión capilar en tubos secos son mucho menores que para tubos premojados.

- En tubos secos los valores de  $p_c^d$  varian marcadamente con la velocidad y llegan a tomar valores negativos debido a la inversión de la curvatura del menisco originada a altas velocidades. Por el contrario, los valores de  $p_c^d$  en tubos premojados son prácticamente constantes aun a las velocidades

mas altas.

- En los dos casos de imbibicion. los valores de  $p_c^d$  se incrementan abruptamente hacia el valor de  $p_c^e$  a medida que la velocidad disminuye.

- El incremento al que se hace referencia en el punto anterior. comienza a producirse a valores de Ca significativamente menores en el caso de tubos secos que en el de tubos premojados.

VII.2.1. - Capilares Secos

Resulta util compararar los resultados obtenidos para tubos secos con los descriptos en el Capitulo V para imbibiciones agua - kerosene. En aquel caso, la velocidad de los fluidos durante el transcurso de la experiencia variaba de 0.08 cm/seg a 0.13 cm/seg, lo que implica una variación en el número capilar de  $3.10^{-5}$  a  $4.10^{-5}$ . Para ese rango de velocidades, la presión capilar dinámica se mantenía constante.

Este resultado concuerda con los obtenidos ahora para imbibiciones agua - ciclohexano. Observese que la región de  $p_c^d$ constante abarca precisamente el mismo rango de números capilares.

También los nuevos resultados concuerdan con los anteriores en cuanto a la importante diferencia observada entre el valor de la presión capilar a velocidad nula,  $p_e^{\phi}$ , y su valor a Ca > 10<sup>-5</sup>,

Con estas nuevas experiencias se comprueba que no existe una discontinuidad en la presión capilar dinámica sino que ésta se incrementa continuamente hacia el valor de la presión capilar estática, a medida que la velocidad disminuye.

En este aspecto, nuestros resultados coinciden con los publicados por Blake [45], Kennedy y Burley [46,47] e Inverarity [48] quienes, midiendo meniscos exteriores a cintas y fibras, encuentran un comportamiento similar para el ángulo de contacto (fig. 12).

También, este abrupto crecimiento de la presión capilar dinámica a bajas velocidades, parece confirmar la sugerencia de
Blake de que a velocidades suficientemente bajas existe una transicion entre dos mecanismos de invasion (45).

Como ya se ha mencionado en el punto III.2, Blake propone que a velocidades de avance muy bajas las moleculas del fluido desplazante tienen tiempo de reemplazar a las del fluido desplazado adsorbidas sobre el sólido. De esa manera el fluido desplazante estara en contacto con la pared del sólido.

Por el contrario, a velocidades mas elevadas, este proceso de desorción no tendrá tiempo de producirse y el fluido desplazante avanzará separado del solido por una monocapa de moleculas del fluido desplazado.

Se ha comprobado experimentalmente [63,64] que la presencia de moléculas adsorbidas sobre la superficie de un sólido modifica la tensión interfacial. Bangham y Razouk [65] hacen un anàlisis teórico del problema y cuantifican la variación de la tensión interfacial para el caso de un sólido en contacto con un gas. Encuentran que la diferencia entre la tensión interfacial de un sólido en vacío  $(\gamma_{go})$  y en equilibrio con un vapor  $(\gamma_{gv})$ es:

$$\gamma_{po} - \gamma_{pv} = R T \int_{0}^{p} \Gamma(p) d(\ln p)$$

donde R es la constante universal de los gases, T es la temperatura del sistema, p la presión del gas y  $\Gamma(p)$  es el número de moles de gas adsorbidos por unidad de área de sólido. Aunque  $\Gamma(p)$  sólo puede ser calculada cuando se conoce la isoterma de adsorción del gas sobre el sólido, queda claro que  $(\gamma_{ac} - \gamma_{av})$  es una cantidad positiva.

Esto significa que la tensión interfacial del sólido disminuye cuando sobre su superficie se adsorben moléculas del gas. Consecuentemente aumentará, de acuerdo a la relación de Young, el ángulo de contacto entre cualquier líquido desplazante, el gas y el sólido. Este aumento de  $\theta$  implica una disminución del cos  $\theta$  y por consiguiente de la presión capilar.

Chappuis (63) comprobo experimentalmente esta variación

para una muestra de polietileno fluorado en contacto con vapor de distintos alcanos. midiendo angulos de contacto. En todos los casos encontró que estos aumentan respecto de su valor en vacío.

Por otra parte. Pinter y Wolfram [64], en un estudio experimental del ángulo de contacto entre distintos líquidos inmiscibles que se desplazan en el interior de capilares de vidrio Pyrex. también observaron que dicho angulo aumenta con el grado de adsorción de las moléculas del fluido desplazado sobre el vidrio.

En este trabajo se ha hecho mención (IV.2.1.) a que no fue posible realizar experiencias de imbibición utilizando tubos de vidrio Pyrex. en las que agua desplaza a kerosene, debido que el vidrio cambiaba sus propiedades de mojabilidad. A la luz de esta discusión puede concluirse que el vidrio Pyrex adsorbe moléculas de kerosene y disminuye su tensión interfacial respecto de éste, de tal manera que el ángulo de contacto entre el agua, el kerosene y el vidrio, medido a través del agua, se hace mayor que  $90^{\circ}$ . Es decir, el vidrio se transforma en mas afín al kerosene que al agua.

El abrupto incremento encontrado en la presión capilar dinámica. cuando la velocidad de la interfase disminuye por debajo de cierto valor límite, puede atribuirse. entonces, a que. a partir de dicho valor, comienza a producirse desorción de las moléculas de ciclohexano y adsorción de las de agua en los alrededores de la línea de contacto. Esto produce un aumento de la tensión interfacial del vidrio respecto al ciclohexano lo que se traduce. a su vez. en una disminución del ángulo de contacto y, por lo tanto. en un aumento de la presión capilar.

Este modelo se ve también corroborado analizando los resultados del Cap. V. respecto a imbibiciones donde kerosene desplaza aire. En ese caso. la diferencia entre la presión capilar estatica y la dinámica a Ca =  $10^{-4}$ . era de solo el 10%. Considerando que el aire esta compuesto en un 80% por nitrógeno y que éste se caracteriza por su baja capacidad de adsorberse en cualquier superficie, resulta concordante con lo expuesto que no haya, en ese caso, transición entre ambos regimenes.

#### VII.2.2. - Capilares Premojados

Las características mas importantes de los resultados obtenidos para tubos premojados son los altos valores de la presión capilar y la variación mas lenta de esta con la velocidad.

Ambos aspectos pueden ser explicados por la presencia, en los tubos premojados, de un film residual de agua. La presencia de este film ha sido demostrada experimentalmente én modelos bidimensionales de medios porosos, construidos con microesferas de vidrio [66].

Mumley y Radke [42], por su parte, encontraron que trabajando con tubos capilares premojados obtenian ascensos capilares mayores que con tubos secos, lo que indica valores mas altos de las presiones capilares en juego.

Debe señalarse que este film residual no se trata de la monocapa a la que se hizo referencia en el punto anterior, sino de un film macroscópico que queda sobre las paredes de vidrio durante el proceso de drenaje, debido a la mayor afinidad del vidrio por el agua.

Actualmente esta en desarrollo un trabajo experimental en el que se estudia. utilizando la técnica de trazadores radioactivos descripta en este trabajo, la variación del espesor del film residual con la velocidad a la que se realizó el drenaje [67].

En la primera parte de este trabajo se ha hecho mención acerca de la influencia de este film en las características de los perfiles de saturación de medios porosos. Precisamente, estas experiencias confirman esos resultados. Al estar el menisco en contacto con un film de agua en lugar de estarlo con las paredes del tubo. el ángulo de contacto efectivo resulta menor y la presión capilar dinámica mayor (fig. 39).

La presencia de este film puede explicar también la diferente dependencia de  $p_c^d$  con la velocidad, para Ca > 10<sup>-5</sup>, en ambos casos estudiados: la fuerte disminucion de  $p_c^d$  con la velocidad observada en los tubos secos puede deberse, como se

dijo. a los efectos de interacción de la linea de triple contacto con la monocapa de fluido desplazante y el solido. Estos efectos serán mucho menores en el caso premojado puesto que el film separa a la linea de contacto del sólido.



Fig. 39.- Esquema del aspecto de una interfase durante una imbibición. (a): tubo seco, (b): tubo premojado.

Sin embargo esta descripción no explica por que se produce tambien un incremento en los valores de la presión capilar en el caso de tubos premojados. Efectivamente, debería esperarse que el film residual de agua suprima la transición entre los dos regimenes de avance de la interfase mencionados. En el capítulo que sigue se estudia con detalle el movimiento de la interfase a muy bajas velocidades y se analizan condiciones experimentales que producen un régimen no estacionario. Los resultados obtenidos y su interpretación, aportan nuevos elementos a esta discusión.

# VIII. - EFECTOS TRANSITORIOS EN EL DESPLAZAMIENTO DE UNA INTERFASE

En este capítulo se describen las experiencias que permitieron comprobar que una interfase sometida a un gradiente de presión constante se desplaza, bajo determinadas condiciones, en régimen no estacionario (68).

Las mismas consisten en primeras imbibiciones de agua desplazando ciclohexano. Es decir que la secuencia seguida es: llenado del tubo capilar con ciclohexano y desplazamiento del mismo por agua.

Los efectos transitorios ocurren en dos casos: inmediatamente después de que el ciclohexano toma contacto con el agua y después de que la interfase entre ambos es frenada abruptamente.

En ambas situaciones se observa que, partiendo de un valor inicial alto, la velocidad de la interfase disminuye exponencialmente hasta alcanzar su valor de equilibrio.

A continuación se detallan las modificaciones realizadas al dispositivo experimental para estudiar este fenómeno y la técnica utilizada. Posteriormente se presentan los resultados obtenidos. Los mismos se discuten en el último paragrafo del capítulo.

### VIII.1.- Dispositivo y Técnica Experimental

En la fig. 40 se muestra un esquema del dispositivo experimental utilizado para las experiencias aguí presentadas. El mismo es esencialmente igual al utilizado en las experiencias descriptas en el capítulo anterior. con la única modificación de que se ha colocado a la salida de la cubeta de entrada una microválvula de tres vias. Una de las vías se conecta a la cubeta de entrada, la otra al tubo capilar y la tercera a un tercer reservorio de agua.

Esta modificacion permite estudiar los fenómenos transitorios en las dos situaciones mencionadas.



Fig. 40.- Esquema del dispositivo experimental utilizado para estudiar efectos transitorios.

La tecnica experimental utilizada para el primer caso es la siguiente:

- se coloca el tubo en la cubeta de salida sellando la unión con masilla plastica.

- se liena la cubeta de salida (2), y por consiguiente el capilar, con ciclohexano hasta una altura prefijada (h\_).

- se llena ia cubeta de entrada (l) y la válvula de tres vías, con agua hasta ia altura h prefijada y se cierra la válvula.

- se conecta el capilar a la valvula. inmediatamente se abre la misma y se toman los pares de valores  $(x_i, t_i)$ , siendo el primer par de valores tomado el correspondiente al comienzo del capilar y a la formación del menisco.

De esta manera, se estudia la variacion de la velocidad de la interfase en la primera parte de su recorrido dentro del tubo.

Es importante destacar que en las experiencias descriptas en el capitulo anterior. la velocidad de la interfase se estudia solamente a partir de x  $\simeq$  6 cm. ya que 5 cm del capilar son introducidos en la cubeta de entrada y el primer par de valores se toma cuando el menisco llega a la superficie de acrílico.

En el segundo tipo de experiencias se siguen los pasos que se detallan a continuación:

- se llena el capilar y la cubeta de salida con ciclohexano, de la forma antes descripta, hasta una altura h\_,

- se llena la cubeta de entrada y la válvula con agua hasta una altura  $h_i$  prefijada, tal que la presión de entrada sea menor que la de salida ( $h_i > h_i$ ) y se cierra la válvula.

- se llena el reservorio 3 con agua hasta una altura  $h_{g}$  >  $h_{z}$ , tal que  $\Delta p = p_{c} - p_{g} \simeq 100 \text{ dinas/cm}^{2}$ ,

- se coloca el capilar en la valvula y mediante esta se conecta el reservorio 3 con el capilar, de esta manera se impone a la interfase una diferencia de presión  $\Delta p = p_c - p_p$ ,

- se deja que la interfase avance alrededor de 2 cm a la alta velocidad resultante ( $\simeq 0,1$  cm/seg) y súbitamente se cambia la posición de la válvula, conectando el capilar con la cubeta de entrada. Esto es, a un  $\Delta p = p_{a} - p_{b}$ , negativo.

- se toman los valores  $(x_i, t_i)$  a partir del momento de la inversión de la posición de la válvula.

De esta manera se estudia la variación de la velocidad de la interfase. despues de haber sufrido un cambio brusco de presion: de un  $\Delta p \simeq 100 \text{ dinas/cm}^2$  a un  $\Delta p$  negativo con valores que varían entre -50 y -400 dinas/cm<sup>2</sup>.

#### VIII.2. - Resultados Experimentales

Para destacar la diferencia entre los resultados experimentales obtenidos en regimen no estacionario y los descriptos en el capítulo anterior, se repetirán aquí estos últimos centrando la atención solo en el rango de números capilares correspondiente a las velocidades mas bajas.

En la fig 41 se muestra la variación de la presión capilar dinámica con el numero capilar, para valores del mismo comprendidos entre  $1.10^{-8}$  y  $5.10^{-5}$ .



Fig. 41. - Variación de la presión capilar con el número capilar.

Esta curva se obtuvo con el método descripto en el capítulo anterior. Es decir, imponer a la interfase un  $\Delta p$  negativo y constante y determinar la velocidad resultante. Con estos datos y utilizando la ec (7):

$$p_{c}^{d} = \frac{8}{b^{2}} \mu L v - \Delta p$$

se calcula la  $p_c^d$ .

La curva de la fig. 41 resulta entonces, una extensión de los resultados mostrados en la fig. 33, a valores muy bajos del número capilar. Se confirma que  $p_c^d$  tiende en forma continua hacia el valor de  $p_c^{\bullet}$ . Es importante recordar la forma en que se obtuvieron estos datos para luego poder compararlos con los siguientes.

Inicialmente, se impone a la interfase un  $\Delta p_i$  negativo ( $\simeq$  -50 dinas/cm<sup>2</sup>), cuando esta llega a x = 6 cm se mide su

velocidad  $v_i$ : luego (agregando una pequeña cantidad de ciclohexano en la cubeta de salida) se lleva  $\Delta p$  a un segundo valor  $\Delta p_2$  menor pero muy proximo a  $\Delta p_i$ . se mide  $v_2$ ; se vuelve a agregar la misma cantidad de ciclohexano en la cubeta de salida, llevando  $\Delta p$  a un valor  $\Delta p_3$ . se mide  $v_3$ , y así siguiendo. Es decir que los puntos graficados son producto de un proceso de lento y continuo aumento de la contrapresión sobre la interfase. Las velocidades resultantes para cada  $\Delta p$  aplicado son constantes tal como se espera para líquidos de igual viscosidad.

Por el contrario. las experiencias descriptas en este capítulo involucran cambios bruscos de presión. En el primer caso, formación del menisco, la interfase inicialmente plana se enfrenta subitamente a una contrapresión elevada y el segundo consiste, precisamente, en un frenado brusco de la misma.

El resultado es que, en ambos casos, se observa que la interfase se mueve en regimen no estacionario, esto es. la velocidad del menísco varía con el tiempo, aunque la contrapresión se mantenga constante.

En la fig. 42 se muestra esta variación de la posición de la interfase con el tiempo, para los dos procesos mencionados.

Se ve que en los dos casos la velocidad decrece con el tiempo siguiendo la misma ley hasta que alcanza un valor constante (línea llena). Lo sorprendente de estos resultados es el largo tiempo que insume alcanzar el régimen estacionario.

La curva indicada con círculos. corresponde al primer proceso: interfase en el extremo del capilar, la indicada con rombos llenos corresponde al segundo: interfase frenada abruptamente. Ambas experiencias se realizaron a  $\Delta p = -140$ dinas/cm<sup>2</sup> y se superpusieron mediante un corrimiento del origen de una de ellas.

Esta es una característica notable de los resultados encontrados. al mismo Ap aplicado. la curva obtenida con el primer proceso se puede superponer a la obtenida con el segundo, mediante un corrimiento adecuado del origen de coordenadas de esta última. Es decir que el tiempo característico de la relajación de la velocidad hacia su valor final, es el mismo,





Fig. 42. - Variación de la posición de la interfase con el tiempo en regimen no estacionario. Los círculos corresponden al primer método experimental y los rombos al segundo, la línea llena es el ajuste lineal de los datos a tiempos largos.  $\Delta p = -140$ dinas/cm<sup>2</sup>.

En cuanto al valor final que alcanza la velocidad. es importante destacar que coincide con el valor que hubiera tenido en régimen estacionario con igual contrapresion. Es decir. si con el valor del Ap aplicado y el de la velocidad final pd resultante de cada experiencia. se calculan las correspondientes. los valores hallados coinciden con los de la curva de la fig. 41.

Esto se ve en la fig. 43 donde se han repetido los datos de la fig. 41 (régimen estacionario) y se han superpuesto, con cuadrados, los valores de  $p_c^d$  correspondientes a las experiencias de régimen no estacionario. Se ve que ambos tipos de datos

describen la misma curva. lo que implica que en el caso no estacionario, la interfase va "ajustando" su velocidad hasta llegar a la velocidad de equilibrio con la presión aplicada.



Fig. 43.- Variación de la presión capilar con el número capilar. Los rombos llenos corresponden a las experiencias de regimen estacionario (fig. 41), los cuadrados a las velocidades finales en regimen no estacionario.

Otro resultado cualitativamente importante es que el tiempo insumido en el proceso de relajación de la velocidad hacia su valor de equilibrio, aumenta notablemente con la contrapresión aplicada. En la fig. 44 se muestran dos curvas correspondientes a distintos  $\Delta p$ . Se ve que el tiempo de relajacion es mayor para la mayor contrapresion.



Fig. 44. - Variación de la posición de la interfase con el tiempo en régimen no estacionario para 2 experiencias realizadas a diferente contrapresión. (A):  $\Delta p = -280$  dinas/cm<sup>2</sup>, (B):  $\Delta p = -140$  dinas/cm<sup>2</sup>,

Para calcular el tiempo característico de relajación asociado a cada  $\Delta p$ , o lo gue es lo mismo a cada velocidad final, se opero de la siguiente forma. Se ajustó con una recta,  $x_{\infty}(t)$ , la última parte de las curvas de relajación, es decir, la zona donde la interfase se mueve con la velocidad de equilibrio. Se calculo:

$$\Delta x(t) = x_{\infty}(t) - x(t)$$

que representa el apartamiento de la posición de la interfase de la posición que debería haber tenido al tiempo t, si se hubiera movido a la velocidad de equilibrio. Finalmente, se grafico log  $\Delta x(t)$  en función del tiempo. En todos los casos se obtuvo una ley de variación lineal. En la fig. 45 se muestra esta representación para la experiencia realizada a  $\Delta p = -100$  dinas/cm<sup>2</sup>.



Fig. 45. - Variación con el tiempo de la diferencia entre la posición de la interfase esperada en régimen estacionario y la posición en régimen no estacionario. La línea llena es el ajuste lineal.  $\Delta p = -100 \text{ dinas/cm}^2$ .

La dependencia lineal encontrada implica que:

$$\Delta x \propto e^{-t/\tau}$$

donde  $\tau$ , tiempo característico de la relajacion, esta dado por la inversa de la pendiente de la recta graficada en la fig. 45.

Esto significa que la interfase se acerca exponencialmente a la velocidad de equilibrio.

En la fig. 46 se muestran los valores obtenidos para  $\tau$ , en función de la contrapresión aplicada. Se ve que el rango de variación de  $\tau$  es muy grande. Los menores valores son del orden de 50 seg, mientras que las relajaciones mas lentas tienen un  $\tau$ del orden de 10.000 seg.



Fig. 46.- Variación de los tiempos característicos de relajación de la velocidad con la contrapresión aplicada.

En la fig.47 se representa, en escala log-log, la variación de  $\tau$  con el número capilar  $Ca_f = \mu v_f / \gamma$ , donde  $v_f$  es la velocidad en régimen estacionario. Se observa que, para  $Ca_f < 10^{-6}$ , la dependencia de  $\tau$  con la velocidad es lineal, con pendiente aproximadamente igual a -1, lo que significa que para ese rango

de números capilares es  $\tau \propto 1/v$ .



Fig. 47.- Variación de los tiempos carcterísticos de relajación de la velocidad con el número capilar correspondiente a la velocidad final. La línea llena es el ajuste lineal realizado para Ca < 10<sup>-6</sup>.

VIII.3. - Discusión de los Resultados

Dado que no se encontro en la bibliografia consultada ninguna referencia a resultados iguales o similares a los presentados en este capitulo, se considero necesario investigar todas las posibles causas del regimen no estacionario observado.

En primer lugar se descartaron los efectos de inercia como origen de la relajación de la velocidad. Efectivamente, no puede ser esta la explicación ya que el tiempo característico de los fenómenos de inercia, en las condiciones experimentales empleadas, es del orden de 1 seg [69], esto es 50 veces menor que los menores tiempos característicos encontrados experimentalmente.

Otra causa de los efectos observados pudo haber sido la disolución del vidrio en el agua [70]. Esto hubiera producido un concentración de sales y. por lo tanto, gradiente de un gradiente de tension superficial entre el agua cercana a la linea de contacto y la posterior. Se ha comprobado que en ese caso se produce un fenomeno conocido con el nombre de efecto Marangoni [71], debido al cual varia la dinamica de la interfase.

Para descartar esta posibilidad se hicieron experiencias iguales a las descriptas, pero con el agua saturada con las sales del vidrio. Esto se consiguio poniendo en contacto el agua con polvo de vidrio de los mismos tubos capilares, durante varios días. No se observaron cambios en los resultados experimentales.

Eliminados, entonces. estos dos posibles orígenes y teniendo en cuenta que en el rango de velocidades utilizado, el término de la ec. (7) correspondiente a la caída de presión por viscosidad es despreciable; surge que la presión capilar dinámica debería ser prácticamente igual a la contrapresión aplicada. Si ésta permanece constante, debería también serlo la presión capilar y por lo tanto la velocidad.

La variación observada durante el régimen transitorio, sólo puede ser explicada. entonces. si se supone que en las proximidades de la línea de contacto tienen lugar procesos de interacción entre el fluido y la superficie del tubo capilar que modifiquen la presión capilar. Necesariamente. estos procesos deben ser muy lentos para justificar los grandes tiempos de relajación encontrados.

A su vez, es natural suponer que estos procesos de interacción son los mismos que los que provocan el abrupto crecimiento de la presión capilar hacia su valor estático. descripto en el capitulo anterior y verificado en las experiencias presentadas en este.

Como ya se ha sugerido. un posible origen de estos

resultados es que. a velocidades por debajo de una cierta velocidad crítica. se produce. sobre la superficie del vidrio y en las proximidades de la línea de contacto. la desorción de las moléculas del fluido desplazado y la adsorción de moleculas del fluido desplazante. En cambio, para velocidades mayores que esa velocidad crítica. la desorción no se produce y el agua avanza sobre una monocapa de moleculas de ciclohexano adsorbidas sobre la superficie del vidrio. Es decir que se esta en presencia de dos mecanismos de mojado con presiones capilares diferentes.

Sin embargo, de acuerdo a los resultados que se mostraron en el capitulo anterior que, ademas fueron corroborados por los descriptos en este. el paso de uno a otro mecanismo no es abrupto ya que esto implicaria un salto de la presion capilar, desde su valor en uno de los mecanismos de mojado, a su valor en el otro; cuando Ca se acerca al valor de transicion entre ambos regimenes.

Por el contrario en la curva mostrada en la fig. 44 se ve que la disminución de la presión capilar se produce en forma continua en un amplio rango de numeros capilares  $(3.10^{-9} \text{ a}$  $5.10^{-9}$ ). Esto implica que debe existir una distribución muy amplia de tiempos característicos para el proceso de adsorción.

Pueden entenderse que esta distribución de tiempos característicos está relacionada con el grado de ligadura de las moléculas de fluido desplazado adsorbidas sobre la superficie. O, dicho de otra manera, con la diferente profundidad de los sitios de adsorción.

Esta descripcion permite, ademas, explicar el régimen transitorio observado en uno de los procesos experimentales utilizado: subito frenado de la interfase por medio de la aplicación de una contrapresion  $\Delta p$ .

Inmediatamente después de aplicarse  $\Delta p$ . la velocidad de la interfase disminuye muy rapidamente debido a la gran diferencia entre su estado de movimiento (alta velocidad) y la contrapresión externa. Esta reducción de la velocidad hace posible el comienzo del proceso de desorción en los sitios menos profundos, con tiempos característicos mas cortos. Esto, a su

vez, aumenta la presión capilar, por lo que la reducción de la velocidad se hace mas lenta.

A medida que la velocidad disminuye. mas sitios de adsorción, con tiempos característicos cada vez mas largos, se hacen activos, lo que aumenta mas la presión capilar. La velocidad, entonces, disminuira mas lentamente, hasta que llega a un valor de equilibrio con la presión externa, alcanzando el estado estacionario compatible con la ec. (7).

Es esperable que los ultimos pasos de la relajación estén controlados por el tiempo característico correspondiente a los sitios mas profundos accesibles a cada velocidad de equilibrio. De esta manera, en cada uno de los pares ( $\tau$ , Ca<sub>f</sub>) representados en la fig. 47, puede considerarse a  $\tau$  como el tiempo característico máximo, asociado a los sitios de adsorción mas profundos que participan en el proceso de desorción cuando la interfase se mueve con un numero capilar Ca<sub>f</sub>.

Asimismo, en la fig. 44. el comienzo de la zona de presión capilar constante (Ca =  $5.10^{-6}$ ), significa que, a partir de esa velocidad, ni siguiera los sitios menos ligados participan en el proceso de desorción.

Logicamente, si esta es la explicacion del fenomeno observado, los  $\tau$  deben tener limite inferior y superior correspondientes respectivamente a los sitios de adsorción menos y mas profundos. En el sistema estudiado, el límite inferior corresponde a  $\tau \simeq 50$  seg y el superior es del orden de 10.000 seg.

En cuanto al segundo proceso experimental utilizado en el cual también observo régimen transitorio: se movimiento inmediatamente posterior a la formacion de la interfase. la interpretación expuesta mas arriba no aicanza a explicar porqué la interfase inicia su movimiento con tan alta velocidad. Pero en este caso, los problemas de borde son tan determinantes como poco conocidos, por lo que puede pensarse que el proceso de su angulo de contacto inicial formación del menisco. por ejemplo, sea el responsable de la gran velocidad con que comienza a moverse.

Aceptada la falta de comprension de esta etapa, la descripción molecular realizada si explica el proceso de relajación posterior de la velocidad, hacia el régimen estacionario.

En sintesis. los procesos transitorios observados son, desde el punto de vista aqui desarrollado. el producto de la competencia entre dos efectos: la tendencia de la velocidad a disminuir debido a la contrapresion aplicada y a aumentar debido al incremento de la presion capilar que produce la cada vez mayor cantidad de sitios desorbidos. Esta competencia deriva en una disminución de la velocidad mucho mas lenta que lo esperado.

#### IX. - CONCLUSIONES

Se han analizado a lo largo de este trabajo los resultados de experiencias de desplazamientos de fluidos inmiscibles realizadas en medios porosos y en modelos capilares.

En ambos casos el objetivo fue investigar la influencia de los efectos capilares sobre el desplazamiento.

Las conclusiones mas importantes de las experiencias en medios porosos son:

\* Los desplazamientos se realizaron a diferencia de presion constante, con valores próximos a la presión capilar del sistema. La técnica utilizada permite registrar muy facilmente los caudales resultantes. Estos brindan una herramienta sumamente util para analizar las características del proceso. De la comparación de los mismos en experiencias de primera y segunda imbibición en medios iguales y en medios distintos, se obtuvo información acerca de la variación de la permeabilidad del lecho en estudio.

\* Una característica original de las experiencias realizadas, es el estudio comparativo de los resultados para medios íguales, saturados inicialmente con el fluido menos y mas mojante. El análisis de los perfiles de saturación obtenidos en uno y otro caso, permitio describir los cambios que se producen al alterar el orden de las sucesivas saturaciones.

\* También es original el estudio. en el mismo medio. de las dos secuencias de imbibición separadas por una de drenaje. Se demostro la influencia en los resultados de la estructura geométrica del medio poroso. La comparación de los perfiles obtenidos para medios consolidados y no consolidados permitió describir las características principales del desplazamiento. Mediante el analisis del rol preponderante de los efectos capilares, se sacaron conclusiones acerca de la distribución final del fluido residual en ambos casos.

\* Por ultimo, se ha probado que la técnica de radiotrazadores desarrollada, es sumamente versatil, aún en condiciones en que otras técnicas dejan de ser eficientes. Esto

quedó demostrado en el estudio exhaustivo realizado acerca del movimiento, durante una segunda imbibicion. del agua remanente de la primera imbibición.

Respecto de las experiencias en sistemas capilares horizontales, los resultados obtenidos constituyen un aporte al entendimiento de los procesos basicos involucrados en el desplazamiento de líquidos inmiscibles.

El dispositivo experimental diseñado. cuyas características principales son la simpleza y la alta sensibilidad. permitio investigar detalladamente la dinamica de una interfase líquido-líquido, en distintas condiciones de flujo.

\* Por medio de un modelo constituído por tres capilares interconectados se puso de manifiesto la influencia del campo transversal de presiones en las condiciones de irrupción del esta fluido desplazante. De manera. se explicaron las diferencias observadas, en este y otros trabajos. la en irrupción del fluido desplazante de un medio poroso. segun se trate de una imbibición o de un drenaje.

\* Utilizando un solo capilar. se investigo la variación de la presión capilar con la velocidad de la interfase en un amplio rango de números capilares. Se estudió dicha variación en procesos de primera y segunda imbibición y de drenaje. Los diferentes resultados obtenidos para cada proceso. explicaron importantes características de las experiencias realizadas en medios porosos.

\* Se puso especial enfasis en el analisis de la dinámica de la interfase a muy bajas velocidades. El abrupto crecimiento de la presión capilar cuando la velocidad tiende a cero constituye un resultado original para interfases líquido-líquido. El mismo fue interpretado utilizando una teoría que prioriza los eventos moleculares que ocurren en la línea de triple contacto.

\* Por último, se amplió el estudio de la dinámica del mojado a movimientos no estacionarios. Se comprobo que, en determinadas condiciones, la velocidad de la interfase sufre un proceso de relajación hacia su valor de equilibrio. Los tiempos característicos de dicha relajación, varian en un rango muy

grande llegando a valores notablemente altos. La extensión del modelo molecular mencionado permitio interpretar este fenómeno, no descripto en la bibliografía consultada.

## REFERENCIAS

 Bikerman, J.J.: Physical surfaces. Academic Press, New York, 1970.

[2] Young, Th.: An essay on the cohesion of fluids: Phil. Trans. Roy. Soc. vol 95, 1805.

(3) Laplace. P.S.: Mecanique Celeste: Suppl., 10 livre, 1806.

(4) Bashforth F., Adams. J.C.: An attempt to test the theories of capillary action: Cambridge University Press. Inglaterra. 1883.

[5] Lord Rayleigh: On the theory of surface forces: Philos. Mag.30, 1890.

(6) Lucas, R.: Kolloid Z. 23, 15, 1918.

[7] Washburn, E. W.: The dynamics of capillary flow: Physical Revue. 17, vol. VII. 3. 273-283. 1921.

[8] Sugden, S.: J. Chem. Soc., 119, 1483, 1921.

[9] Hackett, F.E.: Trans. Faraday Soc., 17, 260, 1921.

[10] Rideal, E.K.: Philos. Mag. Ser., 6 44, 1152, 1922.

[11] Bosanquet. C.H.: Philos. Mag. Ser., 6 45, 525, 1923.

[12] Melrose. J.C.: Thermodynamic relations between inmersional and adhesional wetting: J. Colloid Interface Sci., 20, 8, 1965.

(13) Morrow. N.R.: Physics and thermodynamics of capillary action in porous media: Indust. and Eng. Chem., 62, 32, 1970.

(14) van Brakel. J.: Pore space models for transport phenomena in porous media - review and evaluation with special emphasis on capillary liquid transport: Powder Tech., 11, 205, 1975.

(15) De Gennes, P. G.: Wetting: Statics and dynamics: Rev. Mod. Phys., 57, 827, 1985.

(16) Chandler. D.: Introduction to Modern Statistical Mechanics:Oxford University Press. 44-49. New York. 1987.

[17] Landau. L.: Mécanique Statistique. MIR. 457-565. Moscu.1967.

[18] Joanny. J.F., de Gennes. P.G.: Physique des surfaces et des interfaces; C. R. Acad. Sc. Paris. t. 299. Serie II. 7. 1984.

[19] Cazabat, A. M.: How does a droplet spread?: Contemp. Phys., 28. n4. 347-364, 1987.

[20] Bear, J.: Dynamics of Fluids in Porous Media: American Elsevier, New York, 1967.

[21] Hoffman, R.L.: A study of the advancing interface; J. Colloid Interface Sci., 50, 228-241, 1975.

[22] Tanner, L.H.: The spreading of silicone oil drops on horizontal surfaces; J. Phys., D12. 1473. 1979.

[23] Cox. R.G.: The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface; J. Fluid Mech., 168, 195, 1986.

[24] Fermigier, M.: Dynamique d'une interface liquide-liquide dans un capillaire et visualisation d'ecoulements par colorants photochromes: Thesis Paris VI University. 1989.

[25] Batchelor, G.K.: An Introduction to Fluid Dynamics:

Cambridge University Press. Inglaterra. 1967.

[26] Burdon, R.S.: Surface tension and the spreading of liquids; Cambridge University Press. Inglaterra, 1949.

[27] de Gennes. P.G.: Theory of slow biphasic flows in porous media: PhysicoChemical Hydrodynamics Vol. 4, n 2, 1983.

(28) de Gennes. P.G.: Partial filling of disorderd materials: Physics of disordered materials. eds. Adler. D.. Fritsche. N., Ovshinsky. S., Plenum Publishing Corp., 1985.

[29] Cazabat, A.M., Cohen Stuart, M.A.: Dynamics of wetting: Effects of surface roughness: J. Phys. Chem., 90, 5845, 1986.

[30] Lelah. M., Marmur. A.: Spreading kinetics of drop on glass:J. Colloid Interface Sci., 82, 518, 1981.

(31) Ausseré. D., Picard, A. M., Léger. L.: Existence and role of the precursor film in the spreading of polymer liquids; Phys. Rev. Lett., 57, 2671, 1986.

[32] Levinson, P., Cazabat, A. M., Cohen Stuart, M. A., Heslot, S., Nicolet. S.: The spreading of macroscopic droplets; Rev. Phys. Appl., 23, 1009, 1988.

[33] Chen. J.D.: Experiments on a spreading drop and its contact angle on a solid: J. Colloid Interface Sci., 122, 60, 1988.

[34] Hardy, W.: The spreading of fluids on glass: Philos. Mag.,38, 49, 1919.

(35) Bascom. N.D., Cottington. R.L.. Singleterry, C. R.: Contact angle, wettability and adhesion, Adv. Chemistry Series, 43. 381, 1964.

[36] Leger, L., Erman, N., Guinet-Picard, A.M., Aussere, D., Strazielle, C.: Precursor film profiles of spreading liquid drops; Phys. Rev. Lett., 60, 2390, 1988.

[37] Leger, L., Erman, N., Guinet-Picard, A.M., Aussere, D., Strazielle, C.: Spreading of liquids on smooth solid surfaces: Role of long range forces: Rev. Phys. Appl., 23, 1047, 1988.

[38] Bell, G., Cameron, P.: Jour. Phys. Chem., 10, 659, 1906.

[39] Eley. D.D.. Pepper, D.C.: A dynamical determination of adhesion tension, Trans. Faraday Soc., 42, 697, 1946.

[40] Elliot, G.E.P., Riddiford, A.C.: Dynamic contact angles.The effect of impressed motion; J. Colloid Interface Sci., 23, 389, 1967.

{41} Cain, J.B., Francis. D.W., Venter, R.D., Neumann, A.W.: Dynamic contact angles on smooth and rough surfaces: J. Colloid Interface Sci., 94, 123. 1983.

[42] Mumley, T.E., Radke, C.J., Williams, M.C.: Kinetics of liquid-liquid capillary rise; J. Colloid Interface Sci., 109. n 2, 398, 1986.

[43] Bayramli, E., Mason, S.G.: Tensiometric studies on wetting; Can. J. Chem., 59, 1962, 1981.

[44] Dettre, R.H., Johnson, R.E.: Contact angle measurements on rough surfaces: Adv. Chem. Series, 43, 1965.

[45] Blake. T.D.: Wetting kinetics: Proceedings of the AIChE International Symposium on the mechanics of thin film coating., March 6-10. 1988. New Orleans (Louisiana).

[46] Kennedy, B.S.: Dynamic wetting and air entrainment at a

liquid-solid-gas junction; Ph.D. Thesis. Herriot-Watt Univ., Edinburgh, 1975.

[47] Burley, R., Kennedy. B.S.: An experimental study of air entrainment at a solid/liquid/gas interface; Chem. Eng. Sci., 31, 901. 1976.

[48] Inverarity. G.: Dynamic wetting of glass fibre and polymer fibre; Brit. Polymer J., 1, 245, 1969.

[49] Blake. T.D., Haynes. J.M.: Kinetics of liquid-liquid displacement; J. Colloid Interface Sci., 30, n 3, 1969.

[50] Dussan, V.E.B.: The moving contact line: The slip boundary condition; J. Fluid Mech., 77. 665. 1976.

[51] Huh, C., Mason, S.G.: The steady movement of a liquid meniscus in a capillary tube; J. Fluid Mech., 81, 401, 1977.

[52] Dussan, V.E.B.: On the spreading of liquids on solid surfaces. Static and dynamic contact angles; Ann. Rev. Fluid. Mech., 11, 1979.

[53] Rowlinson, J.S., Widom, B.: Molecular Theory of Capillarity, Clarendon Press, Londres, 1982.

[54] Teletzke, G.F., Davis. H.T.. Scriven, L.E.: Wetting Hydrodynamics: Rev. Phys. Appl., 23, 1988.

{55} Glasstone, S.. Laidler. K.J., Eyring. H.: The Theory of Rate Processes: Mc-Graw-Hill, New York, 1941.

[56] Calvo, A.. Paterson. I., Chertcoff. R.. Rosen. M.. Hulin. J.P.: Wettability effects on the dynamic of fluid displacement through capillary tubes: Rev. Brasileira de Fisica. n l. vol. 20. 1990. [57] Anderson, W.G.: Wettability literature survey. Effects of wettability on water flooding; Journal of Petroleum Technology, 1125-1144, 1987.

(58) Morrow. N.R.. Lim. H.T., Ward, J.S.: Effect of crude oil induced wettability changes on oil recovery; SPE: 89 February, 1986.

[59] Mungan, N.: Enhanced oil recovery using water as a driving fluid: Interfacial phenomena and oil recovery: capillarity. wettability: World Oil. 192. n4 y n 5, 1981.

[60] Kyte, J.B., Rapoport. L.A.: Linear behavior and end effects in water wet porous media; Petroleum Trans., AIME. 1958.

[61] Chertcoff, R., Paterson, I., Calvo, A., Rosen, M.: Efecto de la mojabilidad en la recuperación de petróleo: Rev. Petroquímica, n 80. octubre 1991.

[62] Calvo. A., Paterson, I., Chertcoff. R., Rosen, M., Hulin, J.P.: Dynamic capillary pressure variations in diphasic flow through glass capillaries: J. Colloid Interface Sci., vol 141, n 2, 1991.

[63] Chappuis. J.: Contact angles, en Multiphase Science and Technology, vol. 1. G.F. Hewitt, J.M. Delhaye. N. Zuber Eds., Hemisphere Publ. Corp., 1982.

[64] Pinter, J., Wolfram, E.: Wettability of, and oil film stability on glass capillaries as basic processes in tertiary oil recovery, en Surface Phenomena in Enhanced oil Recovery, Ed. Dinesh U. Shah. 1987.

[65] Bangham, D.H., Razouk, R.I.: Adsorption and the wettability of solid surfaces: Trans. Faraday Soc., vol. 33, 1937.

[66] Dullien, F.A.L., Lai, F., Macdonald, I.: Hydraulic continuity of residual wetting phase in porous media: J. Colloid Interface Sci., vol. 109, n 1, 1986.

[67] Chertcoff. R., Rosen. M., Calvo. A.: Estudio experimental del espesor del film residual mediante trazadores radioactivos. No publicado.

[68] Chertcoff. R., Calvo. A., Paterson. I., Rosen. M., Hulin. J.P.: Transient effects in liquid-liquid interface motion through glass capillaries: J. Colloid Interface Sci., en prensa.

[69] Bird, R.B., Stewart, W.E., Lightfoot, E.N.: Transport Phenomena, John Wiley and Sons. Inc., New York, 1960.

[70] Derjaguin, B.V., Zorin. Z.M., Rabinovich. Y.L., Churaev. N.V.: Results of analytical investigation of the composition of "anomalous" water; J. Colloid Interface Sci., 46, 437, 1974.

(71) Levich. V.G.: Physico-Chemical Hydrodynamics. Prentice Hall, Englewood Cliffs, N.J., 1962.

#### AGRADECIMIENTOS

Marta Rosen, Jean Pierre Hulin, Etienne Guyon, Huner Fanchiotti, ESFCI, CONICET, CNRS, Ricardo Chertcoff, Inés Faterson, Grupo de Medios Porosos, Miguel Laborde...

Nombres de personas, de organismos, de grupos humanos. Sin la ayuda de todos y cada uno de ellos, seguramente no hubiera llegado a escribir estas líneas finales.

Marta: Desde el primer día tuvo claro que éste era un objetivo válido y puso todo el esfuerzo necesario para conseguírlo aún teniendo que vencer mi resistencia, que no es poco.

Jean Pierre y Etienne: Amigos y Directores del Laboratorio de Physique et Mecanique des Milieux Heterogenes (LFMMH) de la Ecole Superieure de Physique et Chimie Industrielles de la Ville de Paris (ESPCI). Brindaron con entusiasmo todo su apoyo, hospitalidad y conocimientos.

Huner: Aceptó la responsabilidad de leer y avalar el manuscrito.

CONICET-CNRS: Firmaron y financiaron el acuerdo de cooperación internacional (PICS) que posibilitó el trabajo conjunto de nuestro grupo y el LPMMH, con resultados que superaron nuestras propias expectativas.

Ricardo: Muchas horas, seguramente varios miles de horas trabajando codo a codo hacen que la palabra compañero renueve en Ricardo su sentido mas profundo. Dentro de la totalidad que esto implica, quiero destacar las características que me resultaron imprescindibles: cordura, serenidad, sensatez.
Inés: Aportó una rara combinación que la hicieron insustituible, alegría y audacia acordes con su juventud, constancia y paciencia propias de su madurez.

Grupo de Medios Porosos: Necesariamente debo nombrar a los demás integrantes, permanentes o pasajeros, de este grupo humano ya que creo firmemente que su consolidación es el logro mas importante de estos años de trabajo. Irene Temprano, Ippolito, Norma Analía Barrantes, Susana Gabbanelli, Marcelo Piva, Miguel Vartuli, Rodolfo Aparicio, Silvia Obernauer, Alejandro D'Onofrio, Gabriela Pasquini, Jaime Kauffman, Ariel Carp, Marcelo Morales. Estudiantes o graduados, jóvenes o no tanto, cercanos o lejanos, directa o indirectamente cada uno de ellos contribuyó a que este trabajo tomara forma. Y además, juntos, aprendimos mucho mas que física. Trabajar con optimismo, vencer las limitaciones propias y ajenas, discutir todo lo necesario, apoyar los intentos, acompañar los fracasos, compartir los éxitos, fueron y son objetivos permanentes.

Miguel: Compartió con estoicismo todas las vicisitudes de la etapa de redacción, y tanto mas...

A todos ellos: Gracias.

Febrero de 1993.