РАЗДЕЛ XIX. ФИЗИКА

Краков М.С.

Диффузия и концентрационная конвекция как механизмы перемешивания магнитной и немагнитной жидкостей*Белорусский национальный технический университет
(Республика Беларусь, Минск)*

doi:10.18411/lj-11-2018-174

idsp: ljournal-11-2018-174

В последние годы широко исследуются различные методы перемешивания жидкостей для микрожидкостных устройств [1]. Как один из управляющих механизмов во многих устройствах используется магнитное поле. Особенно эффективно использование этого инструмента, если одна из жидкостей является магнитной. Магнитная жидкость представляет собой коллоидный раствор ферромагнитных частиц размером около 10 нм, покрытых слоем ПАВ, в жидкости-носителе. Физические механизмы, реализующие движение жидкостей и изменение формы диффузионного фронта под действием магнитного поля в зоне контакта взаимно растворимых магнитной и немагнитной жидкостей, исследованы в ряде работ [2 - 6]. Однако до сих пор не изучены конечные структуры, возникающие в результате контакта таких жидкостей и скорость перемешивания жидкостей под воздействием магнитного поля, а также возможная степень перемешивания.

В настоящей работе рассматривается двумерный прямоугольный контейнер высотой h с отношением длины к высоте $5 : 1$, который заполнен магнитной жидкостью на 0,25 высоты, а остальной объем контейнера заполнен чистой жидкостью-носителем. Контейнер находится в поле силы тяжести и, так как плотность магнитной жидкости выше плотности жидкости-носителя ($\rho_{mf} = \rho_p c + \rho_f(1 - c)$, где c – объемная концентрация твердой фазы), то магнитная жидкость занимает нижнюю часть контейнера. Контейнер находится во внешнем постоянном однородном магнитном поле, ориентированном вертикально.

Система уравнений, описывающая двумерное движение магнитной жидкости в переменных функция тока – вихрь и изменение концентрации магнитных частиц в ней имеет вид [7, 8]

$$\frac{\partial \omega}{\partial t} + (\vec{u} \cdot \nabla) \omega = \nu \Delta \omega + \frac{\mu_0 M_S}{\rho} \frac{\chi_0 \hat{H}}{1 + \chi_0 \hat{H}} \left(\frac{\partial c}{\partial x} \frac{\partial H}{\partial y} - \frac{\partial c}{\partial y} \frac{\partial H}{\partial x} \right) - g \beta_c \frac{\partial c}{\partial x}$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + (\vec{u} \cdot \nabla) c = D \Delta c - \frac{D \mu_0 m \nabla H}{kT} \frac{c}{Ph} + \frac{D m_p \vec{g}}{kT} c, \quad \Delta \psi = -\omega$$

$$\text{div} \vec{B} = 0, \text{curl} \vec{H} = 0, \vec{B} = \mu_0 \left(\vec{H} + \vec{M}(H) \right), \vec{M}(H) = M_S \frac{\chi_0 \hat{H}}{1 + \chi_0 \hat{H}}, M_S = M_{Ic}$$

где M_S – намагниченность насыщения магнитной жидкости, c – объемная концентрация частиц, включая оболочку ПАВ, χ_0 – начальная магнитная восприимчивость магнитной жидкости, $\hat{H} = H/M_S$, $\beta_c = (1/\rho) \partial \rho / \partial c$, m – магнитный момент частицы, m_p – масса частица, включая оболочку ПАВ, остальные обозначения традиционные, ось x направлена горизонтально вдоль поверхности магнитной жидкости, ось y направлена вертикально вверх.

Вязкость коллоида зависит от концентрации частиц. Известен ряд экспериментальных аппроксимаций подобной зависимости. В настоящем исследовании используется зависимость

$$\eta/\eta_0 = f(c) = \left[\frac{1 + 1,25c}{1 - c/0,63} \right]^2$$

Для записи уравнений в безразмерной форме были выбраны следующие величины: $[t] = h^2/D_0$, $[\omega] = D_0/h^2$, $[u] = D_0/h$, $[H] = M_S$, учтена также зависимость вязкости магнитной жидкости от концентрации частиц $\eta = \eta_0 f(c)$ и зависимость коэффициента диффузии от вязкости $D = D_0/f(c)$, где D_0 – коэффициент диффузии в жидкости без частиц. Тогда система уравнений принимает вид

$$\frac{\partial \omega}{\partial t} + (\vec{u} \cdot \nabla) \omega = f(c) Sc \Delta \omega + Gr_m \frac{\chi_0 H}{1 + \chi_0 H} \left(\frac{\partial c}{\partial x} \frac{\partial H}{\partial y} - \frac{\partial c}{\partial y} \frac{\partial H}{\partial x} \right) - Gr_c \frac{\partial c}{\partial x}$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + (\vec{u} \cdot \nabla) c = \nabla \left[\frac{1}{f(c)} (\nabla c - U c \nabla H + G \vec{e}_g c) \right], \quad \Delta \psi = -\omega$$

$$\vec{H} = \nabla F, \nabla(\mu \nabla F) = 0, \mu = 1 + \frac{\chi_0}{1 + \chi_0 H} \quad (1)$$

где безразмерные критерии определены следующим образом: число Шмидта $Sc = \nu/D$, $G = m_p g h^2 / kT$, $U = \mu_0 m M_S / kT$, концентрационное число Грасгофа $Gr_c = \beta_c g h^3 / D_0^2$, магнитное число Грасгофа $\mu_0 M_S^2 h^2 / \rho D_0^2$.

На границах контейнера должны выполняться следующие условия: для скорости условие прилипания: $\psi = 0, \partial \psi / \partial n = 0, \omega = -\partial^2 \psi / \partial n^2$, для концентрации условие равенства нулю потока массы $\partial c / \partial n = 0$, магнитное поле с удалением от контейнера должно быть однородным: $\partial F / \partial y = H_0, \partial F / \partial x = 0$, а на границах контейнера должны выполняться условия равенства нормальных компонент индукции и тангенциальных компонент напряженности магнитного поля.

Задача решалась численно методом конечных объемов. Была построена прямоугольная сетка, равномерная по каждой из координат внутри контейнера, где велись расчеты функции тока, вихря и концентрации, и неравномерная вне контейнера с увеличивающимся по мере удаления от контейнера шагом для расчета потенциала магнитного поля. Внутри контейнера сетка содержала 84 отрезка по вертикали и 280 по горизонтали, вне контейнера 20 отрезков как над, так и под контейнером и 30 отрезков слева и справа от контейнера. Общий размер использованной прямоугольной сетки был 144×320 . Для решения системы уравнений (1) была построена консервативная экспоненциальная схема [10]. Для дискретизации системы уравнений по времени использовалась явная схема. В связи с быстрым изменением физических величин при включении магнитного поля устойчивое не зависящее от шага по времени решение было получено при достаточно мелком шаге по времени: в зависимости от параметров задачи от $\Delta t = \Delta x \Delta y / (4 \cdot 10^8) = 5,31 \cdot 10^{-13}$ до $\Delta t = \Delta x \Delta y / (4 \cdot 10^6) = 5,31 \cdot 10^{-11}$.

В качестве критерия степени перемешивания использовалось соотношение [1]

$$MI = 1 - \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(\frac{c_i}{\bar{c}} - 1 \right)^2$$

где $\bar{c}$ – средняя по объему концентрация магнитной жидкости, c_i – концентрация в i -той точке, N – количество точек внутри контейнера, включая граничные. Так как в рассматриваемой задаче магнитная жидкость заполняет четверть контейнера и имеет начальную концентрацию 0,1, то легко найти, что начальное значение параметра MI равно $1 - \sqrt{3} \approx -0,73$. При полном перемешивании жидкости в контейнере этот параметр равен 1. Отметим, что $\bar{c} = 0,025$.

Рис.1 $H = 0,15$.

Параметры магнитной жидкости полагались соответствующими жидкости на основе воды с магнетитом в качестве дисперсной фазы, использованной в эксперименте [6]: намагниченность насыщения $M_S = 10$ кА/м, плотность $\rho = 1077$ кг/м³, динамическая

вязкость $\eta = 1,14 \cdot 10^{-3}$ Па, коэффициент диффузии $D_0 = 5,5 \cdot 10^{-12}$ м²/с. Для контейнера высотой $h = 1$ мм для безразмерные параметры при этом имеют следующие значения: $U = 0,225$, $G = 3,16 \cdot 10^{-6}$, $Gr_c = 3,3 \cdot 10^{14}$, $Gr_m = 3,86 \cdot 10^{15}$, $Sc = 1,9 \cdot 10^5$.

Характер изменения формы и расширения диффузионного фронта во времени для слабого магнитного поля $H = 0,1$ показан на рис.1, где в левой колонке представлено поле концентрации, а в правой – функция тока для следующих моментов времени: а), б) $t = 5,3 \cdot 10^{-6}$; в), г) $t = 4,0 \cdot 10^{-5}$; д) совмещенные поля концентрации (в цвете) и функции тока (линии) для центральной части контейнера, $t = 2,1 \cdot 10^{-4}$; е), ж) $t = 2,6 \cdot 10^{-3}$.

При включении магнитного поля диффузионный фронт остается узким, несколько расширяясь и изгибаясь на краях контейнера, где магнитное поле становится неоднородным из-за его искажения магнитной жидкостью (рис.1а). Однако при этом возникает конвективное течение, проходящее через диффузионный фронт, что значительно ускоряет выравнивание концентрации в контейнере по сравнению с чистой диффузией (рис.1б). Со временем плоский диффузионный фронт становится неустойчивым и возникают пики, внешне подобные пикам на свободной поверхности магнитной жидкости (рис.1в). При этом вихри в части контейнера с высококонцентрированной жидкостью начинают обособляться от вихрей в верхней части, где концентрация магнитных частиц невелика (рис. 1г). Через некоторое время окончательно формируются отдельные системы вихрей в верхней и нижней частях контейнера, почти не пересекающие диффузионный фронт (рис. 1д). В результате скорость конвективный перенос магнитных частиц заметно падает, и со временем основную роль в перемешивании начинает играть диффузионный процесс. При этом, как видно из рис. 1е, диффузионный фронт выравнивается, ширина его, сравнившись с высотой возникших ранее пиков, в дальнейшем возрастает очень медленно. При этом течение заметно упрощается (рис. 1ж), формируются три системы парных вихрей (в концентрированной жидкости, в диффузионном фронте и в слабо концентрированной жидкости), причем течение в этих вихрях практически везде перпендикулярно градиенту концентрации, так что конвективный перенос массы очень мал. Соответственно, скорость перемешивания также должна снижаться, что, как будет видно ниже, и происходит (Рис.4).

С ростом магнитного поля картина распространения магнитной фазы изменяется. На рис.2 показаны распределение концентрации (левая колонка) и линии тока (правая колонка) для моментов времени $t = 5,3 \cdot 10^{-7}$ (рис. 2а, 2б), $t = 1,33 \cdot 10^{-6}$ (рис. 2в, 2г), $t = 1,6 \cdot 10^{-5}$ (рис. 2ж, 2з), $t = 2,66 \cdot 10^{-4}$ (рис. 2и, 2к), $t = 2,5 \cdot 10^{-3}$ (рис. 2л, 2м). Если начальные фазы (Рис.1а,б и Рис.2а,б) эквивалентны, то для с ростом пиков образующиеся вихри охватывают весь контейнер от нижней до верхней стенки, причем интенсивность вихрей весьма велика, а ширина существенно больше, чем размер отдельного пика (Рис. 2г). В результате в дальнейшем (Рис. 2д) число образовавшихся пиков значительно меньше, чем число первоначальных возвышений диффузионного фронта. Ширина фронта за это время возрастает незначительно, т.е. он ведет себя подобно границе раздела между двумя несмешивающимися жидкостями. Структура образовавшихся конвективных вихрей на этом этапе такова, что вдоль пика течение направлено сверху вниз. В результате между пиками оно направлено вверх и уносит дисперсную фазу также вверх, образуя дополнительные пики, состоящие из менее концентрированной дисперсной фазы (Рис. 2ж, пики зеленого цвета). При этом ширина диффузионного фронта возрастает, падают градиенты концентрации, уменьшается интенсивность конвективных течений (Рис. 2з). С течением времени интенсивность первичных и вторичных пиков сравнивается (рис. 2и), концентрированная фаза сохраняется только в углах контейнера, где магнитное поле остается неоднородным из-за рассеивания на углах, а интенсивность течения и, соответственно, скорость перемешивания, значительно снижается.

Рис. 2/ $H = 0,35$.

С ростом величины магнитного поля процесс перемешивания не только ускоряется, но и несколько меняется его характер. Из рис.3 видно, что концентрированная фаза, вытягиваясь под действием магнитного поля, достигает верхней стенки контейнера (Рис. 3ж), после чего ширина диффузионного фронта начинает возрастать, а каждый вихрь разбивается на два, расположенных друг над другом (Рис. 3и). По мере увеличения степени перемешивания интенсивность конвективных течений также падает (Рис. 3к, 3л).

Рис.3. $H = 2$.

Действительно, наиболее быстро процесс перемешивания идет на первом этапе, когда магнитное поле перпендикулярно диффузионному фронту. Из рис.4 видно, что с течением времени рост коэффициента перемешивания замедляется, так как он определяется уже не конвективными, а диффузионными процессами, характерное время которых намного больше, чем характерное время, определяемое вязкостью жидкости. При величине магнитного поля $H = 10$ за время $t = 2 \cdot 10^{-3}$ коэффициент МП достигает значения 0,62. Отметим, что при таком значении коэффициента перемешивания уже большая часть объема контейнера с соотношением сторон 1:5 заполнена средой с концентрацией дисперсной фазы в диапазоне $0,4\bar{c} - 1,6\bar{c}$, что в

исследуемом случае $c_0 = 0,1$; $\bar{c} = 0,025$ соответствует диапазону концентраций 0,01 – 0,04 (Рис. 3к). Для магнитной жидкости на основе воды с параметрами, приведенными выше, для контейнера высотой 1 мм безразмерное время $t = 2 \cdot 10^{-3}$ соответствует 6 минутам.

Рис.4. Зависимость коэффициента перемешивания от времени.

Таким образом, предлагаемый метод перемешивания позволяет обеспечить эффективное немеханическое перемешивание двух взаимно растворяющихся жидкостей, одна из которых обладает магнитными свойствами.

1. Gaozhe Cai, Li Xue, Huilin Zhang and Jianhan Lin. A Review on Micromixers. *Micromachines*, 8, 274, (2017); doi:10.3390/mi8090274.
2. G. Kitenbergs, K. Erglis, R. Perzynski, A. Cebers, Magnetic particle mixing with magnetic micro-convection for microfluidics, *J. Magn. Mater.* 380, 227 (2015); <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2014.10.033>.
3. 6. M. Maiorov, A. Cebers, *Magnetohydrodynamics*, 19, 376, (1983).
4. 7. K. Erglis, A. Tatulcenkov, G. Kitenbergs, O. Petrichenko, F. G. Ergin, B. B. Watz, A. Cebers, Magnetic field driven micro-convection in the Hele-Shaw cell. *J. Fluid Mech.* 714, 612, (2013); <https://doi.org/10.1017/jfm.2012.512>.
5. G. Kitenbergs, A. Tatulcenkovs, K. Erglis, O. Petrichenko, R. Perzynski, A. Cebers, Magnetic field driven micro-convection in the Hele-Shaw cell: the Brinkman model and its comparison with experiment. *J. Fluid Mech.* 774, 170 (2015); <https://doi.org/10.1017/jfm.2015.255>.
6. G. Kitenbergs, A. Tatulcenkovs, K. L. Pukina, A. Cebers. Gravity effects on mixing with magnetic micro-convection in microfluidics. <https://arxiv.org/abs/1805.00101v1>.
7. V.G. Bashtovoi, V.K. Polevikov, A.M. Algalad, The effect of diffusion processes on the statics of magnetic fluids. *Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus, Physical-technical series*, 42 (3) (2006).
8. V. G. Bashtovoi, P. P. Kuzhir, A. Yu. Zubarev, V. S. Moroz. Diffusion and magnetophoresis in nanodispersed magnetic fluids with phase transition. *Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus, Physical-technical series*, 53, 78 – 87, (2017).
9. M.S. Krakov, I.V. Nikiforov. Regarding the influence of heating and the Soret effect on a magnetic fluid seal. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 431, 255–261, (2017), <http://dx.doi.org/10.1016/j.jmmm.2016.07.054>.
10. С.Патанкар. Численные методы решения задач теплообмена и динамики жидкости. М. – «Энергоатомиздат», 1984, 150 с.