

КРИТИЧЕСКОЕ ПОВЕДЕНИЕ ГРАНИЦ РАЗДЕЛА ФАЗ В ПОРИСТЫХ СРЕДАХ: АНАЛИЗ МАСШТАБНЫХ СВОЙСТВ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ НЕКОГЕРЕНТНОГО И КОГЕРЕНТНОГО СВЕТА

Д. А. Зимняков^{a,b}, А. В. Садовой^a, М. А. Виленский^a, П. В. Захаров^c, Р. Мюллюля^{d**}*

^a Саратовский государственный университет
410012, Саратов, Россия

^b Институт проблем точной механики и управления Российской академии наук
410028, Саратов, Россия

^c University of Fribourg
1700, Fribourg, Switzerland

^d University of Oulu
FI-90014, Oulu, Finland

Поступила в редакцию 27 февраля 2008 г.

В результате анализа последовательностей изображений поверхности слоев неупорядоченной пористой среды (бумаги) в процессе капиллярного подъема жидкости, полученных при некогерентном и когерентном освещении, установлены закономерности, контролирующие критическое поведение границы раздела жидкой и газовой фаз в слое в процессе ее закрепления. С использованием кумулянтного анализа спекл-модулированных изображений поверхности, а также статистического анализа разностных бинаризованных изображений поверхности при некогерентном освещении показано, что макроскопическая динамика границы на стадии закрепления контролируется главным образом степенной зависимостью частоты зарождения локальных нестабильностей границы (лавин) от критического параметра, в то время как динамика развития локальных нестабильностей контролируется процессом диффузии жидкости в слое и слабо зависит от критического параметра. Предложена феноменологическая модель макроскопической динамики границы раздела фаз для интерпретации полученных экспериментальных данных. Определены значения критических индексов, характеризующих исследуемые образцы в рамках данной модели. Полученные величины сопоставлены с результатами численного моделирования для дискретных моделей направленного протекания, соответствующих уравнению Кардара – Паризи – Жанга.

PACS: 68.35.Rh, 68.35.Ct, 68.35.Fx, 68.35.Ja

1. ВВЕДЕНИЕ

Критическое поведение неидеальных систем различной природы со слабой структурной упорядоченностью является одним из фундаментальных явлений в области физики конденсированного состояния и статистической физики, интенсивно исследуемых на протяжении нескольких десятилетий. В частности, подобное поведение типично для волн плотности,

сти заряда [1], доменных границ в ферромагнитных материалах [2], контактных линий на границе раздела жидкой и твердой фаз [3] и др.

Одним из типичных проявлений критического поведения является развитие границ раздела жидкой и газовой фаз в неупорядоченных пористых средах в условиях нестационарного массопереноса при малых значениях средней скорости \bar{v} движения границы на макроскопическом уровне (на пространственном масштабе порядка характерного размера среды в направлении, перпендикулярном движ-

*E-mail: zimnykov@sgu.ru

**Risto Myllylä.

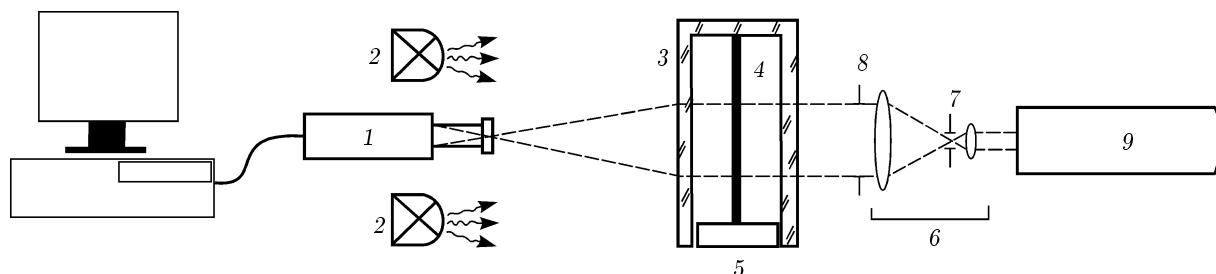


Рис. 1. Схема экспериментальной установки для исследования критического поведения границ раздела фаз в пористых слоях с использованием проекционного метода при некогерентном освещении и спектр-корреляционного анализа: 1 — ПЗС-камера; 2 — люминесцентные лампы для некогерентного освещения; 3 — контейнер с плоскопараллельными стеклянными стенками; 4 — исследуемый образец; 5 — резервуар с жидкостью; 6 — телескопическая система (коллиматор и расширитель лазерного пучка); 7 — точечная диафрагма (пространственный фильтр); 8 — диафрагма, ограничивающая сечение зондирующего пучка; 9 — гелий-неоновый лазер ГН-5П

жению границы) [4–6]. При величине результирующей силы F_Σ , контролирующей движение границы раздела фаз в пористой среде, близкой к некоторому пороговому значению F_c , определяемому структурными характеристиками среды и параметрами взаимодействия жидкой фазы со средой, имеет место скейлинговое поведение зависимости $\bar{v}(F_\Sigma)$: $\bar{v} \propto (F_\Sigma/F_c - 1)^\theta$, что является признаком критического поведения системы [7]. При значениях критического параметра $f = F_\Sigma/F_c - 1 \rightarrow 0$ происходит закрепление границы раздела фаз (interface pinning). На стадии закрепления эволюция границы раздела представляет собой последовательность актов зарождения, развития и исчезновения локальных нестабильностей — «лавин» (avalanches), — характерный размер которых и частота появления также описываются степенными зависимостями от критического параметра f .

Большинство работ по исследованию критического поведения границ раздела фаз в пористых средах, выполненных в прошедшие десятилетия, в основном посвящено исследованиям структурных свойств развивающихся границ на основе численного моделирования с использованием различных дискретных моделей многофазных пористых систем [8–11]. В различных работах приводились противоречивые данные о масштабных свойствах границ раздела фаз, а экспериментальная проверка подобных моделей осуществлялась главным образом путем анализа структурных характеристик границы на макроскопическом уровне (например, средней ширины, высоты и фрактальной размерности границы в условиях капиллярного подъема жидкости) в зависимости от времени и характерных размеров пористой среды [10, 12]. Вместе с тем, в недостат-

точной степени экспериментально исследовано влияние различных факторов на динамику развития границ на заключительной стадии формирования перед закреплением. Подобные исследования представляют интерес не только с точки зрения дальнейшего развития физики критического состояния, но также и для решения ряда прикладных задач, имеющих отношение к нестационарному массопереносу в неупорядоченных средах (например, управление транспортом биологически активных веществ в биотканях).

В данной работе представлены результаты экспериментальных исследований критического поведения границ раздела жидкой и газовой фаз в неупорядоченных пористых средах с применением зондирующего некогерентного и когерентного излучения. В последнем случае рассеяние лазерного излучения динамическими неоднородностями (локальными границами раздела фаз в порах на нестабильных участках глобальной границы) является причиной динамической спектр-модуляции изображений объекта. Корреляционный анализ флуктуаций интенсивности модулирующих изображение спектров позволяет описать эволюцию ансамбля локальных нестабильностей границы при $f \rightarrow 0$. Аналогичный подход применялся ранее для анализа динамики локальных границ раздела фаз в порах при испарении жидкости из пористых слоев [13].

2. МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА И ОБРАБОТКИ РЕЗУЛЬТАТОВ

Динамика развития границ раздела жидкой и газовой фаз в пористых слоях в процессе капиллярного подъема жидкости исследовалась с использова-

нием проекционного метода при некогерентном освещении образцов и спектр-корреляционного анализа полного поля. В первом случае регистрировались последовательности изображений поверхности пористого слоя при диффузном освещении широкополосными источниками света (люминесцентными лампами). При использовании спектр-корреляционного анализа спектр-модулированные изображения поверхности слоя формировались рассеянным вперед под малыми углами лазерным излучением при зондировании слоя коллимированным лазерным пучком с однородным распределением интенсивности. На рис. 1 приведена схема экспериментальной установки, реализующей оба метода исследования. Регистрация последовательностей изображений поверхности слоя в области границы раздела фаз осуществлялась монохромной ПЗС-камерой VS-СТТ-075-2000 (число пикселей в ПЗС-матрице 782×582 , 8 бит/пиксель, линейные размеры пикселя 8.3×8.3 мкм). Используемая оптическая система (объектив National CC TV) формировала на ПЗС-матрице уменьшенное изображение поверхности образца. При исследованиях процессов развития локальных нестабильностей границы раздела фаз при некогерентном освещении применялось линейное увеличение 0.2^{\times} . При исследованиях динамики развития глобальной границы раздела фаз в условиях некогерентного освещения и в случае спектр-корреляционных измерений при когерентном освещении увеличение составляло 0.048^{\times} . Применение большего увеличения в первом случае обусловлено тем, что для всех исследованных образцов характерный размер нестабильностей на начальной стадии их развития не превышал $0.10\text{--}0.15$ мм. Диаметр диафрагмы объектива при регистрации спектр-модулированных изображений выбирался таким образом, чтобы средний размер спектров приблизительно соответствовал размеру пикселей ПЗС-камеры.

Регистрация последовательностей изображений поверхности образцов в диффузно отраженном некогерентном и в прошедшем когерентном свете осуществлялась следующим образом: ПЗС-камера активировалась с использованием поставленной НПК «СОБИ Видеоскан» вместе с камерой программы управления в режиме вывода видеоданных на экран компьютера с частотой 12.5 кадров/с в окне размером 300×300 пикселей. Поскольку программа управления не позволяет сохранять данные на жестком диске с фиксированным межкадровым интервалом, совместно с ней использовалась утилита «SnagIt» (версия 8.0, разработка компании

TechSmith, www.techsmith.com), осуществляющая захват в реальном времени видеоданных из выбранного окна с последующим переносом на жесткий диск в апостериорном режиме. Для исключения искажений видеоданных (что особенно важно в случае корреляционного анализа спектр-модулированных изображений) в утилите применялся режим захвата видео без сжатия; при использовании опции «time-lapse capture» значения кадровой частоты для захвата и воспроизведения видеоданных выбирались одинаковыми, равными кадровой частоте ПЗС-камеры. Для последующего анализа данные, сохраняемые утилитой в формате «*.avi», преобразовывались в последовательность растровых изображений (формат «*.bmp») с использованием специально разработанной программы в среде программирования MatLab 6.0. Подобная процедура регистрации применялась ранее, в частности, в случае спектр-корреляционного анализа процесса термической модификации коллагеновых тканей [14]. Перед проведением экспериментов было выполнено ее тестирование с использованием спектрального анализа последовательностей изображений равномерно движущегося графического тест-объекта в форме системы параллельных полос с синусоидальным распределением серого тона. Результаты анализа показали, что для режимов регистрации, удовлетворяющих условиям выполнения теоремы отсчетов [15], отсутствуют какие-либо существенные отклонения регистрируемых осцилляций яркости от ожидаемого гармонического закона, обусловленные используемой процедурой.

Поскольку максимальные значения высоты подъема жидкости в слое в наших экспериментах существенно превышали размер поля зрения системы объектив–ПЗС-камера в вертикальном направлении, регистрация процесса подъема границы проводилась фрагментарно с привязкой каждой последовательности изображений по времени от начала процесса и по положению системы в вертикальном направлении (относительно уровня жидкости в резервуаре 5, см. рис. 1). Между циклами записи фрагментов проводились переустановка ПЗС-камеры с объективом в вертикальном направлении и перенос аккумулированных утилитой SnagIt видеоданных на жесткий диск. Кремальерный механизм перемещения ПЗС-камеры с объективом был оснащен шкалой, позволяющей фиксировать их положение с точностью не хуже 0.025 мм. Моменты старта и окончания записи фрагментов фиксировались относительно начала подъема жидкости в слое по системному таймеру компьютера. При настройке установки осо-

бое внимание обращалось на обеспечение равномерной освещенности поверхности исследуемых образцов как при некогерентном, так и при когерентном освещении. В случае некогерентного освещения равномерность обеспечивалась тем, что люминесцентные лампы располагались симметрично относительно контейнера с образцом. В случае когерентного освещения для формирования зондирующего коллимированного пучка с однородным распределением интенсивности в приосевой области диаметром не менее 120 мм применялась телескопическая система на основе микрообъектива $40 \times \times 0.65$ с диафрагмой (пространственным фильтром диаметром 10 мкм) и коллимирующей линзы (диаметр с учетом ограничивающей диафрагмы 150 мм, фокусное расстояние 800 мм).

Количество фрагментов (видеоклипов), их длительности и приблизительное время начала записи для каждого фрагмента выбирались на этапе планирования эксперимента исходя из предварительного анализа динамики подъема границы по данным установочных экспериментов для каждого исследуемого образца. В установочных экспериментах регистрировались относительно короткие (с постоянной длительностью 20 с) последовательности изображений с постоянным интервалом между ними, равным 3 мин. На последующем этапе сбора экспериментальных данных для детального анализа поведения границы в процессе ее развития длительность фрагментов постепенно увеличивалась по мере подъема границы, изменяясь от 10 с на начальной стадии развития до 4–7 мин (в зависимости от исследуемого образца) на финальной стадии закрепления границы. Предварительный анализ экспериментальных данных показал возможность их аппроксимации с приемлемой точностью моделью Лукаса–Вашборна [16] (см. ниже) на стадии, предшествующей закреплению границы. Это позволило проводить запись фрагментов на данной стадии без частичного перекрытия областей регистрации для последовательных фрагментов с последующей интерполяцией значений средней скорости подъема границы для интервалов времени между окончанием и началом фрагментов. Подобная методика регистрации исходных данных обусловлена прежде всего ограничениями по системным ресурсам и программному обеспечению, не позволяющими осуществлять захват больших объемов (более 2 Гб) видеоданных.

При обработке последовательностей изображений при некогерентном освещении полученные последовательности кадров подвергались сглаживанию с использованием медианного фильтра, после

чего преобразовывались к бинарной форме. Уровень отсечки выбирался равным $(\langle I_{dry} \rangle + \langle I_{wet} \rangle)/2$, где $\langle I_{dry} \rangle$ и $\langle I_{wet} \rangle$ — средние значения яркости фрагментов изображений соответственно сухой и насыщенной жидкостью областей пористого слоя вблизи границы раздела фаз. Размер анализируемых фрагментов для определения величин $\langle I_{dry} \rangle$ и $\langle I_{wet} \rangle$ выбирался равным 20×20 пикселей. Полученные бинаризованные изображения поверхности слоя $\{\delta^k(i, j)\}$ ($\delta^k(i, j) = 1$ в пределах насыщенной жидкостью области слоя и $\delta^k(i, j) = 0$ для сухой области слоя, k — номер кадра в обрабатываемой последовательности, i и j — номера соответственно столбцов и строк в анализируемом кадре) использовались затем а) для предварительного анализа данных, полученных в ходе установочных экспериментов с исследуемыми образцами, с целью определения количества и длительности последовательностей изображений, необходимых для исследования поведения границы раздела на различных стадиях ее развития; б) для анализа зависимостей средней скорости движения границы раздела фаз от критического параметра по экспериментальным данным, полученным с учетом результатов установочных экспериментов.

Следует отметить, что в общем случае развития границы раздела жидкой и газообразной фаз в толстых пористых слоях распределение жидкости в области границы будет трехмерным, однако для исследуемых в работе тонких образцов бумаги характерные размеры неоднородностей границы в направлении, перпендикулярном ее распространению, как правило, превышают толщину слоя. Сопоставление формы границы раздела на стадии закрепления для бинаризованных изображений двух поверхностей различных образцов, проведенное в ходе установочных экспериментов путем поворота контейнера 3 с образцами (см. рис. 1) на 180° , показало практическую идентичность этих изображений. Различия в вертикальных положениях границы для одних и тех же значений продольной координаты (перпендикулярно преимущественному направлению роста границы), определяемой от края слоя, не превышают 1–3 пикселей, что может быть обусловлено небольшой дефокусировкой регистрируемого изображения при повороте, различиями в чувствительности пикселей ПЗС-камеры и другими факторами. Таким образом, для дальнейшего анализа использовалось предположение о квазидвумерном характере распределения жидкой фазы в области развития границы.

Для последовательностей бинаризованных изображений, полученных в установочных экспериментах, определялась средняя высота подъема верхнего

края границы, $\bar{h}_{max} \approx K \sum_i j_{max}(i)_{\delta=1} / \hat{L}$, в зависимости от времени $t = t_{st} + k\Delta T$. Здесь $j_{max}(i)_{\delta=1}$ — максимальный номер строки для столбца i в анализируемом бинаризованном изображении, для которой $\delta^k(i, j) = 1$, \hat{L} — число столбцов в изображении, K — коэффициент масштабирования, определяемый используемым увеличением оптической системы и размером пикселя ПЗС-матрицы (в нашем случае $K = 173$ мкм), t_{st} — интервал времени между началом капиллярного подъема жидкости в слое и началом записи видеоклипа, ΔT — межкадровый интервал при записи, равный 83 мс. По полученным значениям $\bar{h}_{max}(t)$ затем определялись ориентировочные значения длительности фрагментов для этапа окончательного сбора данных в зависимости от t_{st} :

$$T_{fr}(t_{st}) = \frac{20 \cdot 0.9 H_{\parallel}}{\bar{h}_{max}(t_{st} + 20) - \bar{h}_{max}(t_{st})}.$$

Здесь H_{\parallel} — вертикальный размер используемого поля зрения; область анализа принята равной 0.9 от вертикального размера; длительность фрагментов, регистрируемых для предварительного анализа, равна 20 с. Следует отметить, что для развивающихся в пористых слоях фрактальных границ раздела жидкой и газообразной фаз, для которых возможно существование невыпуклых участков (например, когда для некоторой группы столбцов $i' \leq i \leq i''$ в бинаризованном изображении $\delta^k(i, j_{max}(i)) = 1$, $\delta^k(i, j'(i)) = 1$, $\delta^k(i, j')_{j' < j < j_{max}} = 0$), данный алгоритм будет приводить к несколько завышенным оценкам средней высоты подъема границы. В связи с этим на этапе окончательного анализа данных средняя скорость подъема границы оценивалась не как $[\bar{h}_{max}(t_{st} + k\Delta T) - \bar{h}_{max}(t_{st})]/k\Delta T$, а по иному алгоритму, основанному на определении приращения площади поверхности насыщенного жидкостью участка слоя за данный интервал. При этом для двух бинаризованных изображений границы, соответствующих моментам времени $t_{st} + k_2\Delta T$ и $t_{st} + k_1\Delta T$, средняя скорость подъема в зависимости от времени $t = t_{st} + \Delta T(k_1 + k_2)/2$ определялась как

$$\bar{v} \approx K \frac{\sum_{i,j} \delta^{k_2}(i, j) - \sum_{i,j} \delta^{k_1}(i, j)}{\hat{L}(k_2 - k_1)\Delta T}.$$

Легко убедиться в том, что при квазидвумерном распределении жидкости в слое даже в случае существования невыпуклых участков в бинаризованном изображении вычисление приращения площади насыщенного жидкостью участка слоя позволяет адекватно оценить увеличение объема жидкости в зоне

развития границы за время $\Delta T(k_2 - k_1)$. По полученным из эксперимента и определенным путем интерполяции для временных интервалов между последовательностями изображений значениям \bar{v} восстанавливались зависимости средней высоты подъема границы $\bar{h}(t)$ путем численного интегрирования выражения

$$\bar{h}(t) \approx \int_0^t \bar{v}(t') dt'.$$

Сравнение полученных подобным образом значений $\bar{h}(t)$ с $\bar{h}_{max}(t)$ показало, что для всех исследованных образцов максимальное значение разности $\bar{h}_{max}(t) - \bar{h}(t)$ на стадии закрепления границы не превышает 1.0 мм.

В ходе анализа бинаризованных изображений при некогерентном освещении также рассматривалось среднее число \bar{N}_{aval} локальных нестабильностей фронта (лавин), определяемое как число неперекрывающихся областей в разностном изображении $\delta^{k_2}(i, j) - \delta^{k_1}(i, j)$ в зависимости от $t = t_{st} + \Delta T(k_1 + k_2)/2$, $\Delta t = (k_2 - k_1)\Delta T$ и \bar{h} .

Кроме того, с использованием специально разработанного программного обеспечения в среде программирования MatLab 6.0 анализировалась динамика развития отдельных локальных нестабильностей на завершающей стадии подъема жидкости в слое с последующим усреднением результатов анализа по ансамблю нестабильностей, зарождающихся и развивающихся на интервале времени от $t_{st} + k_1\Delta T$ до $t_{st} + k_2\Delta T$. В данном случае использовалось увеличение оптической системы 0.2[×], а масштабный коэффициент был равен 41.5 мкм/пиксель.

Обработка последовательностей спектр-модулированных изображений поверхности пористого слоя, полученных в условиях когерентного освещения, осуществлялась путем вычисления локальных значений нормированной автокорреляционной функции флуктуаций интенсивности, $g_2(i, j, t, \Delta k) = G_2(i, j, t, \Delta k)/G_2(i, j, t, 0)$, где

$$G_2(i, j, t, \Delta k) = \sum_{k=k_1}^{k_2} [I^{k+\Delta k}(i, j) - \bar{I}(i, j)] \times \\ \times [I^k(i, j) - \bar{I}(i, j)], \\ \bar{I}(i, j) = \sum_{k=k_1}^{k_2} \frac{I^k(i, j)}{k_2 - k_1}, \quad \Delta k \ll k_2 - k_1, \\ t = t_{st} + \frac{\Delta T}{2}(k_1 + k_2). \quad (1)$$

По полученным значениям $g_2(i, j, t, \Delta k)$ вычислялись локальные значения первого кумулянта

корреляционной функции флюктуаций интенсивности [17, 18]:

$$\Gamma_1(i, j, t) = \ln [g_2(i, j, t, \Delta k = 1)] / \Delta T. \quad (2)$$

В качестве пористых слоев с неупорядоченной фибрillярной структурой использованы образцы фильтровальной бумаги с маркировкой ФС (средне фильтрующая, маркировка «белая лента»), ФМ (медленно фильтрующая, маркировка «синяя лента») и ФБ (быстро фильтрующая, маркировка «красная лента») по ГОСТ 12026-76. В качестве насыщающей жидкости использована дистиллированная вода. Слои бумаги длиной 150 мм и шириной от 35 до 60 мм располагались вертикально в фиксирующей рамке таким образом, что нижний край образца контактировал с насыщающей жидкостью, уровень которой в резервуаре 5 (см. рис. 1) поддерживался постоянным. С целью уменьшения влияния испарения жидкости с поверхности пористого слоя на процесс развития границы раздела фаз фиксирующая рамка с образцом и резервуар помещались в закрытый стеклянный контейнер с плоскопараллельными стеклянными стенками. Для каждого типа фильтровальной бумаги было проведено по 10 серий измерений как при некогерентном, так и при когерентном освещении с целью последующей статистической обработки.

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

3.1. Макроскопическая динамика границы на малых и больших временах капиллярного подъема

На рис. 2 приведена полученная в эксперименте зависимость средней скорости \bar{v} подъема границы насыщенного жидкостью слоя от времени для одного из исследованных образцов (фильтровальная бумага ФС), демонстрирующая существование двух характерных режимов нестационарного движения жидкости в пористом слое под действием капиллярных сил. При $t < t_{cr}$ полученные данные допускают с высокой точностью экспоненциальную аппроксимацию $\bar{v}(t) \propto \exp(-t/t_{rel})$, где t_{rel} — характерное время, определяемое структурными характеристиками пористого слоя. В ряде работ (см., например, [19]) отмечалось, что на ранней стадии процесса капиллярного подъема жидкой фазы в пористом слое может быть адекватно описан моделью Лукаса–Вашборна [16] с соответствующим образом выбранными параметрами. Уравнение Лука-

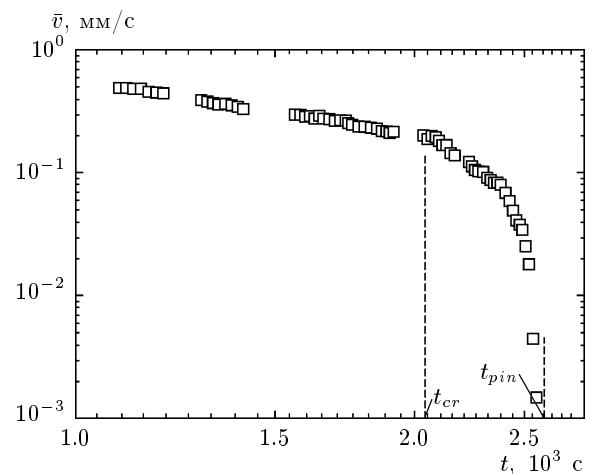


Рис. 2. Зависимость средней скорости движения границы \bar{v} от времени для образца ФС

са–Вашборна, характеризующее динамику подъема жидкости в изолированном капилляре, имеет вид

$$At = -Bh(t) - \ln [1 - Bh(t)], \quad (3)$$

где $h(t)$ — текущее значение высоты подъема жидкости в капилляре, $A = \rho^2 g^2 r^3 / 16\sigma\eta\cos\vartheta$, $B = \rho gr / 2\sigma\cos\vartheta$, ρ , η и σ — соответственно плотность, вязкость и коэффициент поверхностного натяжения жидкости, r — радиус капилляра, ϑ — краевой угол, определяемый взаимодействием жидкости со стенками капилляра. При капиллярном подъеме жидкости с известными значениями ρ , η и σ в пористом слое аппроксимация полученной в эксперименте зависимости $\bar{h}(t) = \int_0^t \bar{v}(\tau) d\tau$ с использованием выражения (3) позволяет получить эффективное значение радиуса капилляра r_{eff} , определяемое характерным размером пор в слое и его пористостью, и значение $\cos\vartheta$.

При $t \rightarrow \infty$ уравнение Лукаса–Вашборна описывает асимптотическое поведение границы, стремящейся к равновесному состоянию $\bar{h}(t)_{t \rightarrow \infty} \rightarrow \bar{h}_{eq} = 1/B$, не зависящему от вязкости жидкости. Можно показать, что в рамках модели Лукаса–Вашборна зависимость абсолютной величины средней скорости $|\bar{v}|$ от времени насыщения слоя жидкостью на больших временных масштабах приближенно описывается выражением $|\bar{v}(t)| \approx (A/B) \exp(-At)$, соответствующим наблюдаемому в экспериментах поведению границ раздела фаз для всех исследованных образцов при $t < t_{cr}$ (см. рис. 2). Резкое убывание \bar{v} при $t > t_{cr}$ соответствует критическому режиму закрепления границы при $f \rightarrow 0$, характеризуемому степенной

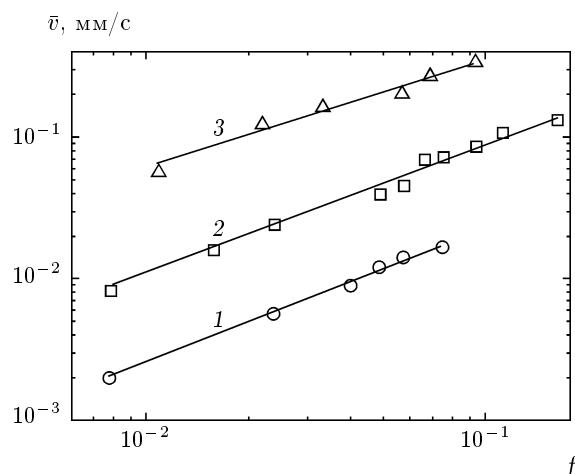


Рис. 3. Зависимости \bar{v} от критического параметра f на стадии закрепления границы для различных образцов: 1 — ФМ; 2 — ФБ; 3 — ФС

зависимостью средней скорости развития границы от критического параметра: $\bar{v} \propto f^\theta$. Отметим, что определяемые в эксперименте значения \bar{h}_{pin} для закрепленных границ раздела фаз в пористых слоях существенно меньше равновесных значений высоты подъема жидкости, определяемых в соответствии с моделью Лукаса–Вашборна при $t \rightarrow \infty$: $\bar{h}_{pin} \ll \bar{h}_{eq}$ [20].

На рис. 3 представлены измеренные с использованием проекционного метода при некогерентном освещении значения \bar{v} для исследуемых образцов в зависимости от величины критического параметра на стадии закрепления границы; значения f определялись из текущего значения $\bar{h}(t)$ и измеренного при $t \rightarrow \infty$ значения \bar{h}_{pin} для закрепленной границы: $f \approx \bar{h}_{pin}/\bar{h}(t) - 1$ [20]. Все полученные в эксперименте зависимости $\bar{v}(f)$ при $f \rightarrow 0$ с приемлемой точностью допускают степенную аппроксимацию, свидетельствующую о критическом поведении границы раздела фаз. В таблице приведены значения θ , t_{cr} , \bar{h}_{pin} для исследованных образцов.

Значения $\theta \leq 1$ соответствуют конечной длительности процесса закрепления границы при капиллярном подъеме жидкости в тонких неупорядоченных пористых слоях. Следует отметить, что представленные в работе [20] экспериментальные данные по динамике развития границы раздела фаз при капиллярном подъеме жидкости в цилиндрической пористой колонне диаметром 8 мм, состоящей из плотноупакованных стеклянных сфер диаметром 180, 253, 359 или 510 мкм, свидетельствуют об ином сценарии критического поведения границы раздела фаз. В частности, оценка величины θ для подобной пори-

стой системы по экспериментальным данным приводит к значению, существенно превышающему единицу, что соответствует бесконечно большому времени закрепления границы раздела фаз. При этом на больших временных масштабах наблюдается убытие \bar{v} в зависимости от t по степенному закону с показателем, приблизительно равным 0.75 (по крайней мере, судя по экспериментальным данным, степенная зависимость средней скорости подъема границы от времени наблюдается в интервале времени, перекрывающем более трех десятичных порядков). Необходимо учитывать, что исследованная в работе [20] пористая система отличается более высокой степенью структурной упорядоченности и более высокой размерностью по сравнению с нашими образцами: граница раздела фаз не может быть представлена фрактальной линией, как в нашем случае (квазидвумерное движение жидкости в тонком пористом слое), а является поверхностью (трехмерное движение жидкости).

Существенным фактором, оказывающим влияние на перенос жидкой фазы в слоях бумаги, являются процессы взаимодействия насыщающей жидкости с волокнами целлюлозы (в частности, их набухание при насыщении слоя бумаги водой). В связи с этим вопрос о влиянии взаимодействия насыщающей жидкости с образующими пористый слой гидрофильными волокнами на развитие границы раздела фаз в слое требует более подробного обсуждения. В работе [21] отмечаются два основных эффекта, оказывающих влияние на процесс насыщения слоев бумаги водой: поглощение жидкости поверхностью волокон и их набухание. Формируя дополнительный канал массопереноса в пористой среде, а также приводя к изменениям размерных характеристик системы пор во времени и по объему среды, данные эффекты могут оказывать определенное влияние на динамику развития глобальной границы раздела фаз в пористом слое. На начальной стадии подъема жидкости в слое, описываемой моделью Лукаса–Вашборна, это должно приводить к нетривиальной зависимости параметров модели A и B (выражение (3)) от времени протекания процесса и, как следствие, к несколько иной форме зависимости $\bar{h}(t)$ по сравнению с классическим уравнением Лукаса–Вашборна с $A(t) = \text{const}$ и $B(t) = \text{const}$. В работе [21] приводятся экспериментальные данные по кинетике набухания волокон целлюлозы в процессе гидратации, позволяющие оценить характерное время этого процесса как 40–50 с; при этом максимальное увеличение диаметра волокон не превышает 15 %. Предполагая, что средний размер пор в

Таблица. Критические индексы θ , времена перехода в критический режим (t_{cr}) и закрепления границы (t_{pin}), а также значения высоты \bar{h}_{pin} закрепленной границы для исследованных образцов (результаты статистической обработки по десяти сериям экспериментальных данных для каждого типа бумаги; уровень значимости при обработке выбран равным 0.9)

Образец	θ	t_{cr} , с	t_{pin} , с	\bar{h}_{pin} , мм
ФБ	0.89 ± 0.06	2150 ± 110	3300 ± 170	127.4 ± 3.6
ФС	0.76 ± 0.07	2050 ± 106	2600 ± 135	93.0 ± 2.9
ФМ	0.93 ± 0.07	1800 ± 98	2900 ± 150	64.5 ± 1.7

процессе гидратации волокон целлюлозы изменяется на величину такого же порядка и учитывая, что эффективный радиус капилляра r в модели Лукаса–Вашборна зависит от среднего размера пор и пористости слоя, можно прогнозировать незначительное изменение (порядка 10–20 %) равновесной высоты подъема жидкости \bar{h}_{eq} по сравнению со «стационарной» моделью Лукаса–Вашборна с $A(t) = \text{const}$, $B(t) = \text{const}$.

Приведенные в работе [21] экспериментальные зависимости $\bar{h}(t)$ и $\bar{m}(t)$, где \bar{m} — текущее значение массы жидкости в слое, на ранних стадиях подъема жидкости в слоях бумаги с высокой степенью точности допускают аппроксимацию вида $\bar{h}(t) \propto \sqrt{t}$, $\bar{m}(t) \propto \sqrt{t}$, предсказываемую моделью Лукаса–Вашборна на малых временах подъема, однако следует отметить меньшее значение наклона кривой $\bar{m}(t)$ по сравнению с $\bar{h}(t)$ в координатах $(\bar{h}, \bar{m}; \sqrt{t})$. Данное различие обусловлено влиянием характерного времени гидратации волокон целлюлозы, в результате чего степень насыщения жидкой фазой в областях непосредственно под границей раздела фаз оказывается меньше предельного значения. Следует также отметить, что на распространение жидкости в пористых средах оказывают влияние макроскопические неоднородности среды, приводя к искажениям формы границы раздела фаз в зоне локализации неоднородности [22].

Очевидно, что структурные характеристики пористой среды, равно как и параметры взаимодействия жидкости с веществом, образующим пористую структуру, оказывают существенное влияние также на процесс формирования границы при $\bar{h} \rightarrow \bar{h}_{pin}$, о чем свидетельствуют значительные различия в величинах \bar{h}_{pin} для образцов ФБ, ФС и ФМ. Исходя из данных таблицы и структурных характеристик исследованных образцов, можно сделать вывод, что уменьшение проницаемости пористого слоя приводит к уменьшению \bar{h}_{pin} . Не следует пола-

гать, однако, что закрепление границы раздела при $\bar{h} \rightarrow \bar{h}_{pin}$ обусловлено именно эффектами взаимодействия жидкости с материалом пористой среды (взаимодействием воды с волокнами целлюлозы). Отметим прежде всего тот факт, что $\bar{h}_{pin} \ll \bar{h}_{eq}$, а ожидаемые в результате гидратации волокон изменения равновесной высоты подъема не превышают 15–20 %.

В работах [8, 10, 11] методами компьютерного моделирования исследовалось формирование границ раздела фаз в неупорядоченных пористых средах с использованием двумерных и трехмерных стохастических сеточных моделей, в которых не учитывались изменения параметров ячеек сетки при их заполнении. Тем не менее подобные модельные системы демонстрируют критическое поведение характеристик (в том числе и средней скорости распространения глобальной границы раздела) при стремлении управляющего параметра к нулю. Результаты исследований распространения границы раздела жидкой и газовой фаз в трехмерных средах на основе гидрофильтральных керамических материалов (см., например, работу [10]), в которых в принципе исключены эффекты типа набухания волокон целлюлозы в бумаге, также свидетельствуют о критическом поведении и фрактальных свойствах развивающейся границы при малых скоростях ее распространения. Подобные проявления не могут быть описаны в рамках континуальных представлений о процессе переноса жидкости в пористых средах (см., например, работу [22]).

Таким образом, критическое поведение границ раздела и эффект закрепления при $f \rightarrow 0$ в неупорядоченных пористых системах есть их фундаментальное свойство, обусловленное именно структурным беспорядком системы, а не результат изменения структуры и свойств системы при взаимодействии с жидкой фазой. Следует также отметить, что в слоях бумаги на стадии закрепления границы достаточно медленные процессы гидратации и набухания воло-

кон в областях слоя непосредственно под границей раздела могут оказывать существенное влияние на кинетику зарождения локальных нестабильностей (лавин), влияя тем самым и на значение критического индекса θ . Однако насыщение этих областей жидкой фазой до максимальной концентрации последней произойдет за конечное время [21], что для слоев бумаги исключает возможность поведения границы раздела фаз, аналогичного описанному в работе [20].

Может быть предложена следующая качественная интерпретация существенных различий в критическом поведении двух типов пористых систем: в случае исследуемых нами неупорядоченных систем при достижении некоторого значения \bar{v}_{ch} , характерного для данной среды, режим непрерывного движения границы раздела фаз, описываемый моделью Лукаса–Вашборна, подавляется и имеет место переход к режиму затухающего дискретного движения границы, контролируемому процессом зарождения, развития и затухания локальных нестабильностей (лавин). В случае же пористой системы с более высокой степенью структурной упорядоченности [20] предположительно не происходит полного подавления непрерывного движения границы раздела, однако при значениях средней скорости движения границы, меньших $\bar{v}_{ch} \approx 100$ мкм/с, возрастающее влияние пространственно-временных флуктуаций локальной скорости $v(x, t)$ приводит не к критическому поведению, а к полученной в работе [20] степенной зависимости от времени на больших временных масштабах.

3.2. Микроскопическая динамика границы на стадии закрепления (результаты анализа бинаризованных изображений при некогерентном освещении)

При $f \rightarrow 0$ и, соответственно, $\bar{h}(t) \rightarrow \bar{h}_{pin}$ движение границы раздела фаз представляет собой последовательность актов зарождения, развития и затухания локальных нестабильностей границы раздела. Рисунок 4, составленный из последовательности разностных бинаризованных изображений поверхности образца в области локализации границы раздела фаз, иллюстрирует эволюцию ансамбля локальных нестабильностей границы при малых значениях критического параметра. Каждый из 19-и фрагментов данного изображения, разделенных линиями, представляет собой участок разностного изображения области локализации границы раздела фаз, полученного при различных значениях $k_2 - k_1$ (инкремент $k_2 - k_1$ при синтезе изображения равен 20).

Исходя из соображений компактности представления набора разностных изображений, вертикальная координата L' выбрана перпендикулярной направлению распространения границы раздела фаз (горизонтальному направлению в регистрируемых изображениях). Размер участков в направлении L' соответствует ширине поля зрения (300 пикселей, или 12.45 мм при линейном увеличении системы 0.2^\times), а в направлении распространения границы (вертикальное направление при регистрации изображений поверхности слоя бумаги) размер участков выбирался исходя из критерия $L''_{max} \approx 1.1(h_{max} - h_{min})_{t=t_{st}}$, где в данном случае h_{max} и h_{min} — максимальное и минимальное значения высоты границы в пределах анализируемого участка в момент начала записи последовательности изображений. Для представленного в качестве примера на рис. 4 случая величина $L''_{max} = 90$ пкс, или ≈ 3.74 мм.

Анализ разностных изображений рис. 4 показывает, что в течение первых девяти секунд с момента начала записи последовательности исходных изображений граница остается стабильной; на десятой секунде происходит зарождение одной локальной нестабильности в зоне с координатами $L'' \approx 86$ пкс, $L'' \approx 63$ пкс; на двенадцатой секунде наблюдаются три зародившихся и развивающихся неоднородности, а на пятнадцатой секунде — семь. В дальнейшем происходит развитие и слияние существующих неоднородностей и зарождение новых на различных участках границы, в результате чего при больших значениях $k_2 - k_1$ зоны активного роста покрывают значительную долю всей границы раздела фаз. Так, при $k_2 - k_1 = 480$ (временной интервал 38.18 с между изображениями, использованными для построения последнего фрагмента рис. 4) суммарная протяженность зон активного роста составляет приблизительно 55 % от длины границы в пределах анализируемого участка. Остальные участки границы остаются стабильными для данного временного интервала.

Для представленного на рис. 4 случая время t_{st} составляет 2120 с, а критический параметр $f \approx 0.1$. Это соответствует области перехода (см. рис. 2) от режима Лукаса–Вашборна движения жидкости к стадии развития границы по механизму зарождения и развития локальных нестабильностей, что иллюстрируется представленным на рис. 4 изображением. При дальнейшем убывании критического параметра вероятность возникновения локальных нестабильностей за конечное время наблюдения резко уменьшается, что в конечном итоге приводит к закреплению границы.

Средняя скорость движения границы при ма-

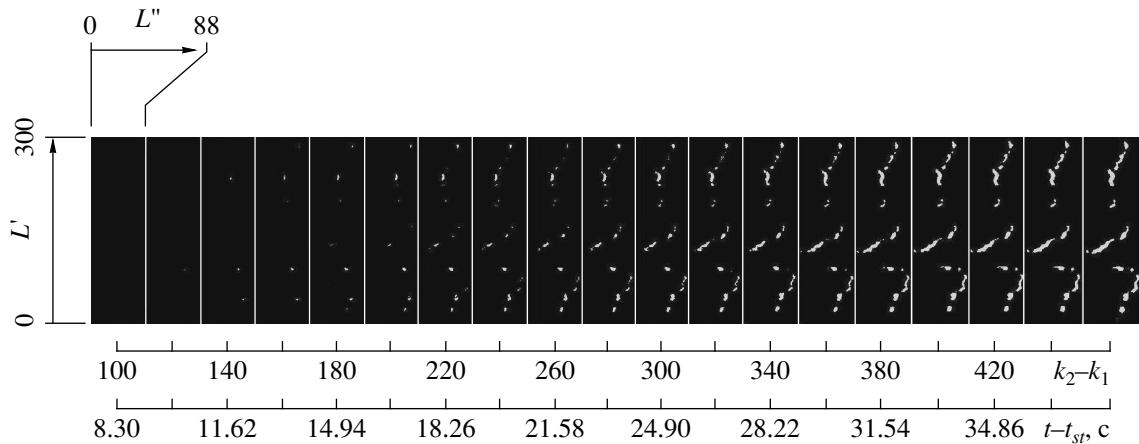


Рис. 4. Развитие локальных нестабильностей на стадии закрепления границы. Образец ФС, $f \approx 0.1$. Линейное увеличение оптической системы 0.2^x . L' и L'' измеряются в пикселях

лых значениях критического параметра может быть представлена в виде

$$\bar{v}(t) \approx \frac{\bar{N}_{aval}(t)}{L} \left\langle \frac{\partial S_{i,aval}(t)}{\partial t} \right\rangle, \quad (4)$$

где $\bar{N}_{aval}(t)$ — среднее число активно развивающихся локальных нестабильностей на участке границы длиной $L = K\bar{L}$, $S_{i,aval}(t)$ — площадь, покрываемая i -й локальной нестабильностью в момент времени t , усреднение $\langle \partial S_{i,aval}(t) / \partial t \rangle$ проводится как по ансамблю нестабильностей, так и по интервалу времени, используемому для определения $\bar{v}(t)$. Исходя из общих закономерностей поведения критических систем при $f \rightarrow 0$ [7], естественно предположить на стадии закрепления скейлинговое поведение зависимостей \bar{N}_{aval} и $\langle \partial S_{i,aval} / \partial t \rangle$ от критического параметра,

$$\bar{N}_{aval} \propto f^\gamma, \quad \left\langle \frac{\partial S_{i,aval}}{\partial t} \right\rangle \propto f^\delta,$$

и следующее соотношение между критическими индексами [7] θ , γ , δ , характеризующими поведение границы раздела фаз: $\theta = \gamma + \delta$.

На рис. 5 для образца ФС приведены зависимости $\bar{v}(f)$ и $\bar{N}_{aval}(f)$, полученные в результате анализа разностных бинаризованных изображений поверхности в области локализации границы раздела фаз. Оценка критического показателя γ по зависимости $\bar{N}_{aval}(f)$ дает значение 0.57 ± 0.05 , сопоставимое по величине с критическим индексом θ средней скорости движения границы, что позволяет сделать вывод о существенно меньшем значении критического индекса δ по сравнению с γ и, соответственно,

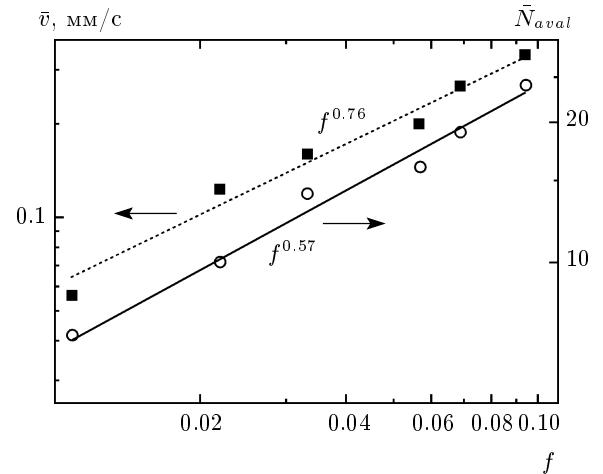


Рис. 5. Зависимости \bar{N}_{aval} и \bar{v} от критического параметра f на стадии закрепления границы для образца ФС

о незначительном влиянии критического параметра на $\langle \partial S_{i,aval} / \partial t \rangle$.

Относительно слабое влияние f на $\langle \partial S_{i,aval} / \partial t \rangle$ также подтверждается анализом динамики развития отдельных локальных нестабильностей границы раздела фаз. На рис. 6 для различных значений критического параметра представлены начальные участки зависимостей $S_{i,aval}(t)$ для зарождающихся и развивающихся локальных нестабильностей, полученные в результате обработки последовательностей разностных бинаризованных изображений поверхности образцов в области локализации границы. Полученные зависимости, характеризующие развитие

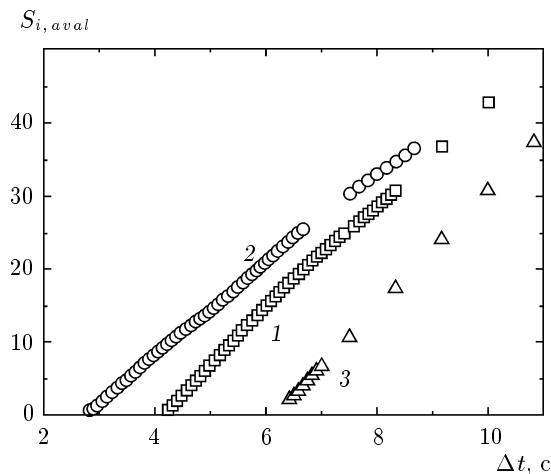


Рис. 6. Зависимости $S_{i,aval}(\Delta t)$ при малых значениях критического параметра для образца ФС: 1 — $f \approx 0.07$; 2 — $f \approx 0.03$; 3 — $f \approx 0.01$. Площадь выражена в числе пикселей в области локальной нестабильности. Линейное увеличение оптической системы $0.2\times$

одной локальной нестабильности в пределах анализируемого участка, допускают кусочно-линейную аппроксимацию вида

$$S_{i,aval}(t') = \begin{cases} 0, & t' \leq t'_{0i}, \\ \alpha_i(t' - t'_{0i}), & t' > t'_{0i}. \end{cases}$$

Здесь время t' определяется с момента начала регистрации последовательности изображений, t'_{0i} — интервал времени, определяемый случайной величиной задержки момента зарождения нестабильности (усредненное по ансамблю локальных нестабильностей значение $\langle t'_{0i} \rangle$ монотонно возрастает с уменьшением f), α_i — скорость возрастания площади поверхности слоя, покрываемой локальной нестабильностью, в процессе развития (на начальном этапе $\alpha_i \approx \partial S_{i,aval} / \partial t \approx \text{const}$, на больших временных масштабах имеет место постепенное убывание $\partial S_{i,aval} / \partial t$, приводящее к затуханию нестабильности). Для приведенных на рис. 6 зависимостей величины α_i имеют близкие значения, т. е. значительное убывание критического параметра не приводит к существенным изменениям динамики развития нестабильностей, выбранных случайным образом для анализа (по крайней мере, на начальной стадии их развития). Данный результат согласуется с выводом о слабой зависимости $\langle \partial S_{i,aval} / \partial t \rangle$ от f , сделанным на основе сопоставления полученных в эксперименте значений критических индексов γ и θ .

3.3. Микроскопическая динамика границы (результаты спектр-корреляционного анализа)

Динамическая спектр-модуляция изображений поверхности пористого слоя при когерентном освещении обусловлена квазиупругим рассеянием света на движущихся локальных границах раздела фаз в порах в области активного роста границы насыщенного жидкостью объема слоя. Значение первого кумулянта $\Gamma_1(t)$ (см. выражение (2)) корреляционной функции флуктуаций интенсивности рассеянного излучения связано с полушириной спектра $S(\omega)$ флуктуаций интенсивности, в свою очередь определяемой подвижностью динамических рассеивающих центров в зондируемой среде. Например, в случае лоренцевского спектра $S(\omega) = (\Gamma/\pi)/(\Gamma^2 + \omega^2)$ и, соответственно, экспоненциальной корреляционной функции $g_2(\tau) = \exp(-\Gamma|\tau|)$ флуктуаций интенсивности, характерных для однократного рассеяния света ансамблями монодисперсных броуновских частиц [23], взаимосвязь между Γ_1 и полушириной Γ спектра флуктуаций интенсивности определяется тривиальным образом: $\Gamma_1 = \Gamma$.

Для режима однократного рассеяния лазерного излучения ансамблями движущихся частиц первый кумулянт Γ_1 обратно пропорционален характерному времени τ_λ смещения рассеивающих центров на расстояние порядка длины волны λ зондирующего излучения и прямо пропорционален $\sin^2(\varphi/2)$: $\Gamma_1 \propto \tau_\lambda^{-1} \sin^2(\varphi/2)$, где φ — угол между волновыми векторами \mathbf{k}_i и \mathbf{k}_s зондирующего пучка и детектируемого рассеянного света (угол рассеяния) [23]. Зависимость параметра τ_λ от подвижности рассеивателей определяется характером их движения в рассеивающей среде. Например, в случае диффузационного движения $\tau_\lambda = (Dk^2)^{-1}$, где D — коэффициент трансляционной диффузии рассеивателей, $k = 2\pi n_r / \lambda$ — волновое число зондирующего излучения в среде, n_r — показатель преломления среды. В случае рассеяния лазерного излучения ансамблем рассеивателей, характеризуемых случайнм распределением скоростей со средним значением, равным $\langle v_m \rangle$, имеем $\tau_\lambda = (\langle v_m \rangle k)^{-1}$.

В режиме многократного рассеяния в зависимости первого кумулянта от подвижности рассеивателей необходимо учитывать кратность рассеяния. Для приближенных оценок можно считать, что $\Gamma_1 \propto \langle n \rangle / \tau_\lambda$, где $\langle n \rangle$ — средняя кратность рассеяния зондирующего излучения для используемых условий детектирования. Следует отметить, что в случае диффузационного режима распространения из-

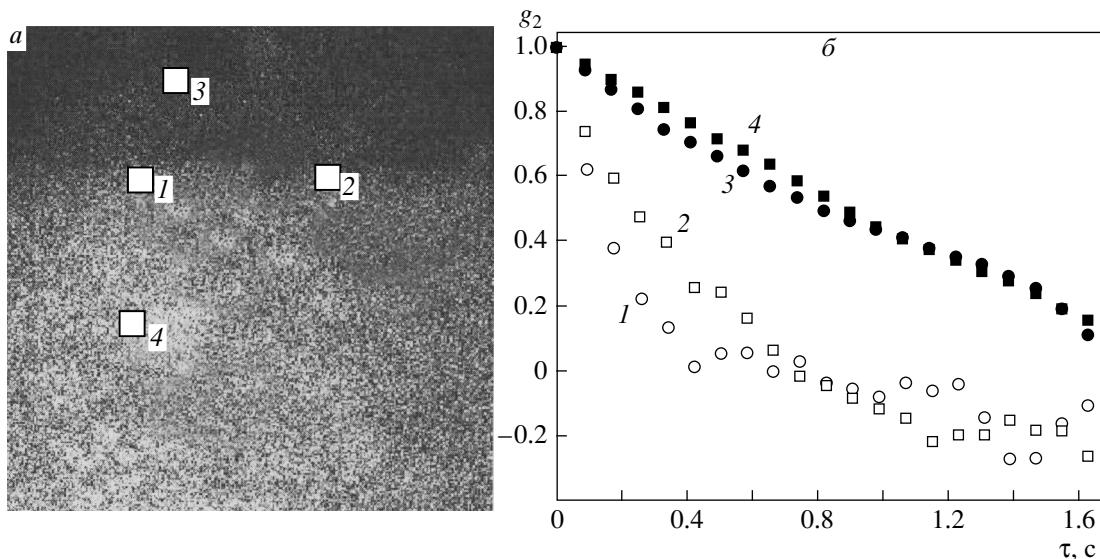


Рис. 7. а) Спекл-модулированное изображение поверхности пористого слоя в области развития границы жидкой и газовой фаз (линейное увеличение оптической системы 0.048^{\times}); б) нормированные временные корреляционные функции флуктуаций интенсивности спеклов на различных участках изображения на рис. 7а

лучения, когда характерные размеры рассеивающей среды значительно больше транспортной длины l^* [24] для среды, величина Γ_1 не зависит от угла между зондирующими и детектируемыми пучками; это обусловлено почти изотропным характером распространения света в среде.

Для условий эксперимента (регистрация рассеянного вперед под малыми углами света) время корреляции флуктуаций интенсивности для различных зон изображения определяется подвижностью рассеивающих центров (движущихся границ раздела фаз в порах [13]) в локальном объеме пористого слоя под данной зоной. При этом время корреляции существенно различается для различных участков, достигая минимального значения в областях активного роста глобальной границы раздела фаз в слое.

Локальные оценки времени корреляции (или другого параметра, определяющего скорость убывания корреляционной функции флуктуаций интенсивности), проводимые в различные моменты времени по областям изображения размером порядка среднего размера спекла, могут быть применены для визуализации подвижности жидкости на микроскопическом уровне в различных зонах активного развития границы. Используемый в работе кумулянтный анализ спекл-модулированных изображений основан на локальных оценках значений первого кумулянта $\Gamma_1(x, y, t)$ с использованием скользящего окна

во временной области по коротким (порядка 40–50 кадров) фрагментам последовательностей изображений. Выбор метода обусловлен его эффективностью в случае анализа нестационарных динамических спеклов (в особенности на стадии закрепления границы, когда за времена 200–400 с ее средняя скорость изменяется в 30–100 раз, см. рис. 2).

Рисунок 7а иллюстрирует существенные различия в динамике спеклов, регистрируемых в зоне развития границы раздела фаз в пористом слое (1, 2) и за пределами зоны (3, 4). Вычисление нормированных корреляционных функций флуктуаций интенсивности проводилось по временному интервалу 4 с (по 50-и кадрам). Оценки времени корреляции флуктуаций интенсивности по спаду кривой $g_2(\tau)$ до уровня $1/e$ (рис. 7б) для зоны активного развития дают значения в интервале от 0.2 до 0.4 с, в то время как для областей 3 и 4 соответствующие значения равны приблизительно 1.3 с. Декорреляция спеклов вне зоны активного развития обусловлена в основном влиянием шумов в измерительной системе (флуктуациями частоты лазерного излучения, шумами ПЗС-камеры, вибрациями). При рассеянии лазерного излучения в насыщенном жидкостью объеме слоя к медленной декорреляции регистрируемых спеклов также приводят процессы в слое с большими характерными временами (изменение объема волокон целлюлозы при их гидратации).

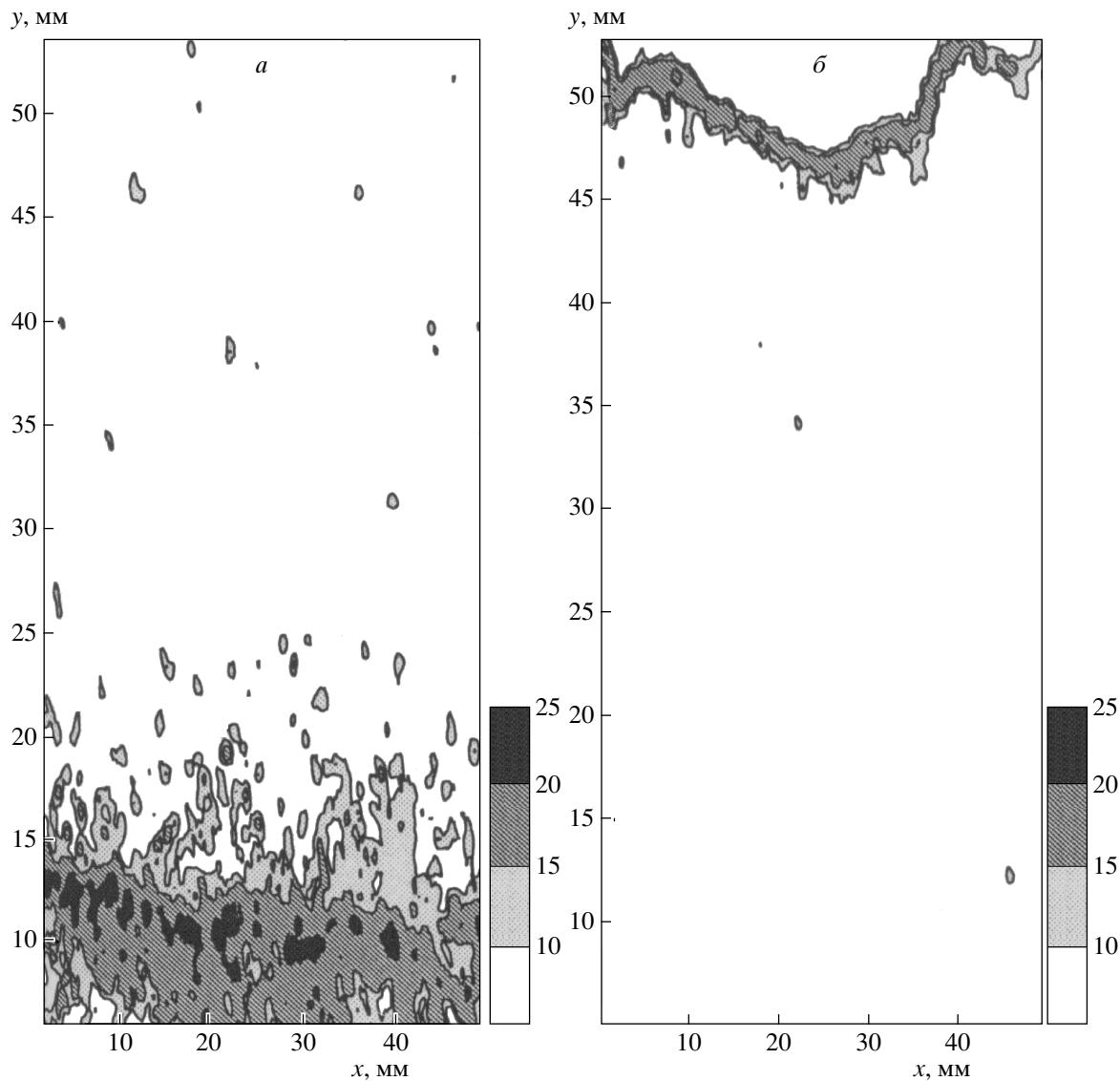


Рис. 8. Визуализация развивающейся границы раздела жидкой и газовой фаз с использованием локальных оценок первого кумулянта Γ_1 в качестве параметра визуализации: *a* — начальная стадия капиллярного подъема жидкости; *б* — стадия, соответствующая экспоненциальному убыванию скорости движения границы в зависимости от времени.

Образец ФС; используемое линейное увеличение оптической системы 0.048^{\times}

Отрицательные значения $g_2(\tau)$ (рис. 7 b , функции 1, 2 при $\tau > 0.8$ с) обусловлены относительно небольшими объемами выборок исходных данных.

Полученные в результате анализа последовательностей спектр-модулированных изображений локальные оценки $\Gamma_1(x, y, t)$ использованы для визуализации зоны активного развития. На рис. 8 представлены изображения, соответствующие начальной стадии роста, т. е. режиму Лукаса–Вашборна с существенным влиянием вязкости жидкости на процесс подъема жидкости в слое (рис. 8 a), и стадии экспо-

ненциального спада скорости \bar{v} движения границы, предшествующей ее закреплению (рис. 8 b). Координата y — направление распространения границы раздела фаз в слое. При построении изображений значения первого кумулянта $\Gamma_1(i, j, y = \text{const})$ вычислялись для каждого пикселя в анализируемых изображениях в соответствии с выражением (2), а значения нормированных корреляционных функций $g_2(i, j, t = \text{const}, \Delta k = 1)$ — с выражением (1). Полученные двумерные матрицы значений $\Gamma_1(i, j, t = \text{const})$ затем подвергались медианной

фильтрации с окном 5×5 пикселей с целью исключения артефактов для отдельных элементов изображения, существенно превышающих окружающие элементы и обусловленных шумами. Для наглядного представления активной области развития границы и исключения излишней детализации использованы четыре градации яркости (соответствующие шкалы представлены на рис. 8).

Для рис. 8а характерны значительные величины первого кумулянта Γ_1 в зоне активного роста границы. В случае рис. 8б зона роста характеризуется существенно меньшими значениями Γ_1 . Отдельные участки на изображениях вне зоны активного роста обусловлены упомянутыми выше шумами в измерительной системе, приводящими к медленной декорреляции спектров и определяющими порог чувствительности системы по значениям Γ_1 . С целью оценки данного порога были проведены оценки среднего значения первого кумулянта для случаев формирования спектр-модулированных изображений при рассеянии лазерного излучения в слоях сухой и насыщенной жидкостью бумаги. Усреднение Γ_1 проводилось по всем элементам матрицы $\{\Gamma_1(i, j, t = \text{const})\}$ после медианной фильтрации. Соответственно были получены значения $\langle \Gamma_1 \rangle_{\text{dry}}^{\text{noise}} \approx 7.8 \text{ c}^{-1}$ для сухой и $\langle \Gamma_1 \rangle_{\text{wet}}^{\text{noise}} \approx 5.2 \text{ c}^{-1}$ для насыщенной жидкостью бумаги. Большее пороговое значение для сухих образцов, проявляющееся в более быстром спаде зависимости $g_2(\tau)$ при малых τ для участка 3 по сравнению с участком 4 на рис. 7 и в большем количестве «шумовых» фрагментов на участке изображения рис. 8а вне зоны активного роста границы, предположительно обусловлено более сильным рассеянием зондирующего излучения в сухом слое бумаги. Это приводит, с одной стороны, к меньшему значению средней интенсивности лазерного излучения, рассеянного вперед под малыми углами слоем сухой бумаги по сравнению со слоем, насыщенным жидкостью. Соответственно, при меньших значениях яркости регистрируемого изображения более существенен вклад шумов ПЗС-камеры в анализируемые флуктуации яркости. Также для области сухого слоя характерна более высокая кратность рассеяния зондирующего излучения (в насыщенном жидкостью слое имеет место подавление многократного рассеяния вследствие иммерсионного эффекта). Это должно приводить к возрастанию порогового значения Γ_1 , обусловленного измерительными шумами, пропорционально кратности рассеяния.

Поскольку значение $\Gamma_1(i, j, t = \text{const})$ определяется характерным временем смещения динамических рассеивающих центров в локальном объеме по-

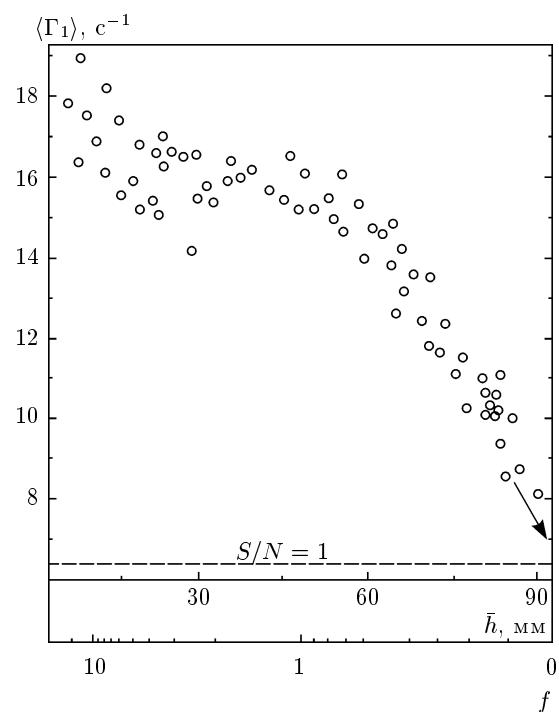


Рис. 9. Значения $\langle \Gamma_1 \rangle$ в зависимости от средней высоты подъема границы раздела фаз \bar{h} и критического параметра f для образца ФС. Штриховой линией отмечено предельное значение $\langle \Gamma_1 \rangle^{\text{noise}}$, определяемое шумами измерительной системы; стрелкой показано предельное состояние, соответствующее закрепленной границе (pinned state)

ристого слоя на расстояние, равное λ ,

$$\Gamma_1(i, j, t = \text{const}) = C_C / \tau_\lambda(i, j, t = \text{const}),$$

где C_C — безразмерный нормировочный коэффициент для используемого кумулянтного метода, усреднение величины $\Gamma_1(i, j, t = \text{const})$ по области активного роста границы раздела фаз в слое позволяет охарактеризовать среднее значение подвижности динамических рассеивателей (границ раздела фаз в отдельных порах) для данной стадии развития границы. При расчете средних значений $\langle \Gamma_1(t) \rangle$ суммирование проводилось только по тем элементам матрицы $\{\Gamma_1(i, j, t)\}$, для которых значения превышали пороговое значение $\langle \Gamma_1 \rangle^{\text{noise}}$, выбранное равным $(\langle \Gamma_1 \rangle_{\text{dry}}^{\text{noise}} + \langle \Gamma_1 \rangle_{\text{wet}}^{\text{noise}})/2$:

$$\langle \Gamma_1(t) \rangle = \frac{1}{N_{th}(t)} \sum_{i,j}^{N_{th}(t)} \Gamma_1(i, j, t).$$

Исследование значений $\langle \Gamma_1 \rangle$ в зависимости от \bar{h} позволяет проанализировать характер изменений

микроскопической подвижности локальных нестабильностей границы на различных стадиях. На рис. 9 представлена соответствующая зависимость для одного из исследованных образцов (фильтровальная бумага ФС). Следует отметить относительно быстрое убывание среднего значения первого кумулянта на начальной стадии роста, когда средняя скорость подъема границы относительно велика и существенное влияние на развитие границы оказывает вязкость ($0 < \bar{h} < 30$ мм), а также стабилизацию значений $\langle \Gamma_1 \rangle$ при переходе к режиму экспоненциального убывания \bar{v} и спад при переходе к критическому режиму закрепления границы ($\bar{h} > 50$ мм).

Как уже упоминалось выше, зависимость τ_λ от параметра, определяющего подвижность рассеивающих центров, характером их движения на микроскопическом уровне. Результаты анализа динамики развития локальных нестабильностей границы раздела фаз с использованием некогерентного освещения (см. рис. 4, 6) позволяют сделать вывод о преимущественно диффузионном характере микроскопического движения жидкой фазы в развивающихся локальных нестабильностях границы в критическом режиме (при $f \rightarrow 0$). Величина $S_{i,aval} \propto \xi_{i,aval}^2$ ($\xi_{i,aval}$ — характерный размер i -й нестабильности) линейно зависит от времени по крайней мере на начальной стадии развития неоднородностей (см. рис. 6), что характерно для процессов диффузионного роста $\langle \xi_{i,aval}^2 \rangle \propto Dt$, где в данном случае D — эффективный коэффициент диффузии жидкой фазы в пористом слое.

Характер убывания автокорреляционных функций флуктуаций интенсивности спеклов для области активного роста границы (см. рис. 7б), с удовлетворительной точностью допускающий экспоненциальную аппроксимацию вида $g_2(\tau) = \exp(-\Gamma|\tau|)$, также в определенной степени свидетельствует в пользу вывода о диффузионном типе движения рассеивающих центров при $f \rightarrow 0$. Следует отметить, что в данном случае близкое к экспоненциальному закону убывание $g_2(\tau)$ с ростом τ действительно типично для режимов однократного и малоуглового многократного рассеяния лазерного излучения в системах с диффузионным движением рассеивающих центров. Однако при существенных различиях в значениях коэффициента диффузии для различных рассеивающих центров должно иметь место отклонение $g_2(\tau)$ от канонической экспоненциальной формы [23]. В связи с этим наблюдаемое в эксперименте поведение $g_2(\tau)$ является только косвенным подтверждением вывода о диффузионном характере движения жидкой фазы. В то же время результаты

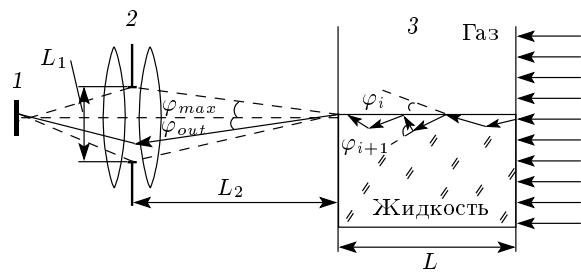


Рис. 10. Геометрические параметры схемы регистрации рассеянного излучения в спекл-корреляционном эксперименте: 1 — ПЗС-матрица; 2 — объектив; 3 — исследуемый образец ($L_1 = 15$ мм, $L_2 = 530$ мм, $L \approx 100$ мкм, $\varphi_{max} \approx L_1/2L_2 \approx 0.014$ рад, $\varphi_{out} = \Sigma \varphi_i$, $\sigma_{\varphi_{out}}^2 = \langle n \rangle \sigma_{\varphi_i}^2$)

таты анализа изображений локальных неоднородностей при некогерентном освещении неоспоримо свидетельствуют в пользу данного вывода.

В условиях спекл-корреляционного эксперимента формирование изображений происходит в результате стохастической интерференции многократно рассеянных составляющих зондирующего излучения, распространяющихся вперед в слое под малыми углами по отношению к оси зондирующего пучка. При определении коэффициента C_C , устанавливающего взаимосвязь между первым кумулянтом Γ_1 , определяемым в спекл-корреляционном эксперименте, и параметром τ_λ , характеризующим динамику рассеивающих центров (локальных границ раздела фаз в порах), необходимо учитывать влияние как среднего числа актов рассеяния $\langle n \rangle$ этих составляющих в слое, так и геометрии эксперимента, определяющей характерное значение угла рассеяния φ регистрируемых составляющих (рис. 10). Считая, что в каждом акте рассеяния значение угла рассеяния φ_i является случайной величиной с нулевым средним, и рассматривая процесс формирования каждой малоугловой составляющей как последовательность статистически независимых актов рассеяния, оценим среднеквадратичное значение угла рассеяния для составляющих, регистрируемых оптической системой, как $\sigma_{\varphi_{out}} \approx \varphi_{max}/3\sqrt{\langle n \rangle}$, где φ_{max} — предельное значение угла регистрации (рис. 10). Множитель 1/3 обусловлен применением «правила 3 σ » к сумме φ_i . Поскольку при однократном малоугловом рассеянии

$$\Gamma_1 = 4k^2 \sin^2(\varphi/2)D \approx k^2 \varphi^2 D = \varphi^2 / \tau_\lambda,$$

для рассматриваемого случая многократного малоуглового рассеяния можно записать

$$\Gamma_1 \approx \langle n \rangle \sigma_{\varphi_{out}}^2 / \tau_\lambda = \varphi_{max}^2 / 9\tau_\lambda,$$

а нормировочный коэффициент C_C для обсуждаемой модели формирования спекл-модулированных изображений не зависит от $\langle n \rangle$ и примерно равен $\varphi_{max}^2/9$. Исходя из геометрических параметров схемы регистрации (рис. 10), значение C_C может быть приближенно оценено как $2.22 \cdot 10^{-5}$.

Значение D по данным рис. 6 в предположении об изотропном характере развития локальных нестабильностей на начальной стадии может быть оценено в рамках модели двумерной диффузии как $3.4 \cdot 10^3 \text{ мкм}^2/\text{с}$ (при $f = 0.07$). С другой стороны, значение $\Gamma_1 \approx 10.7 \pm 1.3 \text{ с}^{-1}$ при $f = 0.07$ (см. рис. 9). По найденному из данных рис. 6 значению D определим $\tau_\lambda \approx 1.5 \cdot 10^{-6} \text{ с}$ (при этом для насыщенной жидкостью бумаги имеем $n_r \approx 1.4$ [25]) и получим, что оцениваемый по экспериментальным данным коэффициент $C_C \approx (1.6 \pm 0.3) \cdot 10^{-5}$ удовлетворительно согласуется с модельным значением (несмотря на сделанные допущения при вычислении последнего). Проведенные оценки показывают целесообразность выбора схемы спекл-корреляционного эксперимента на основе детектирования рассеянного вперед под малыми углами излучения. При этом за счет чрезвычайно малого значения C_C возможна регистрация флюктуаций интенсивности спеклов ПЗС-камерой с относительно небольшой кадровой частотой.

Отметим, что значения $\langle \Gamma_1 \rangle$ при переходе от режима Лукаса–Вашборна к стадии закрепления меняются не столь значительно, как средняя скорость \bar{v} , определяемая в экспериментах с некогерентным светом (см. рис. 2). Это обусловлено тем, что характеризуемая величиной \bar{v} макроскопическая подвижность границы в критическом режиме зависит как от $\langle \partial S_{i,aval} / \partial t \rangle$, так и от \bar{N}_{aval} (выражение (4)). Определяемая в результате корреляционного анализа величина $\langle \Gamma_1 \rangle$ характеризует эффективное значение коэффициента диффузии жидкости в слое, т. е. $\langle \Gamma_1 \rangle \propto D \propto \langle \partial S_{i,aval} / \partial t \rangle$. В соответствии с результатами сопоставления критических индексов γ и δ , а также анализа динамики локальных нестабильностей при $f \rightarrow 0$ (см. рис. 6) величина $D \propto \langle \partial S_{i,aval} / \partial t \rangle$ слабо изменяется при убывании f по сравнению со средней скоростью движения границы. Анализ данных, представленных на рис. 9, на основе предположения о скейлинговом поведении $\langle \Gamma_1 \rangle$ (и, соответственно, эффективного значения коэффициента диффузии жидкости в слое) при $f \rightarrow 0$ ($\langle \Gamma_1 \rangle \propto D \sim f^{\delta'}$) позволил оценить соответствующий критический индекс как $\delta' \approx 0.242 \pm 0.080$, что удовлетворительно согласуется со значением критического индекса $\delta \approx 0.19$, полученным при анализе зависимостей $\bar{N}_{aval}(f)$ и $\bar{v}(f)$ (см. рис. 5).

3.4. Критические индексы: обсуждение полученных экспериментальных результатов

В соответствии с подходом, рассмотренным в ряде работ (см., например, [10, 11]), масштабные свойства границы раздела жидкой и газовой фаз в неупорядоченной пористой среде при $f \rightarrow 0$ могут быть охарактеризованы набором критических индексов z , ν и α . Динамический критический индекс z определяет взаимосвязь характерного размера L пористой системы с характерным временем t_x развития границы раздела фаз: $t_x \propto L^z$. На стадии закрепления для времени t развития границы, существенно превышающем t_x , ширина границы раздела фаз, определяемая как $W(L, t) = \langle \sqrt{h^2(x, t) - h(x, t)} \rangle$, зависит от характерного размера системы как $W_{sat} \sim L^\alpha$, где критический индекс α характеризует фрактальные свойства развивающейся границы. При определении ширины границы использованы следующие обозначения: $h(x, t)$ — случайное значение высоты границы раздела фаз в точке x в момент времени t ; ось x направлена перпендикулярно направлению движения границы; усреднение проводится как по координате x , так и по ансамблю конфигураций границы раздела, реализуемых случайным образом в момент времени t . Критический индекс ν определяет скейлинг характерного размера ξ закрепленных участков границы (и, соответственно, локальных нестабильностей границы) при $f \rightarrow 0$: $\xi \propto f^{-\nu}$. Взаимосвязь между ξ и характерным временем процесса зарождения и развития локальной нестабильности границы также определяется динамическим критическим индексом: $\tau_{aval} \propto \xi^z$ (см., например, [20]). Необходимо отметить [10, 11], что скейлинговое поведение характерных продольного $\xi_{||} = \xi$ (в направлении x) и поперечного ξ_{\perp} размеров локальных нестабильностей границы различается: $\xi_{\perp}/\xi_{||} \propto f^{\nu(1-\alpha)}$. Рядом авторов (см., например, работу [10]) приводится фундаментальное соотношение между критическими индексами z , ν , α и критическим индексом средней скорости движения границы на стадии закрепления: $\theta = \nu(z - \alpha)$.

Представляет интерес анализ взаимосвязи введенных нами критических индексов γ и δ с z , ν , α и сопоставление полученных в результате экспериментов значений с данными других авторов. На стадии закрепления при $f \rightarrow 0$ представим $\langle \partial S_{i,aval}(t) / \partial t \rangle$ как $\langle \partial S_{i,aval}(t) / \partial t \rangle \sim f^\delta \sim \xi_{||} \xi_{\perp} / \tau_{aval}$. С учетом представленных выше скейлинговых соотношений для $\xi_{||}$, ξ_{\perp} и τ_{aval} получим, что $\delta = \nu(z - 1 - \alpha)$. Принимая во внимание, что $\theta = \gamma + \delta = \nu(z - \alpha)$, получим $\gamma = \nu$, т. е. $\bar{N}_{aval} \sim f^\gamma \sim 1/\xi_{||}$.

В работах [10, 11] обсуждаются значения критических индексов, полученные в результате численного моделирования движения границ раздела фаз в неупорядоченных средах с использованием различных моделей (в частности, моделей направленного протекания (directed percolation depinning, DPD), соответствующих уравнению Кардара–Паризи–Жанга [26], и QEW-моделей, соответствующих уравнению Эдвардса–Вилкинсона (quenched Edwards–Wilkinson, QEW) [27]). Отметим, что значения критического индекса θ для двумерных DPD-моделей, находящиеся (с учетом погрешностей моделирования) в интервале от 0.47 до 0.82, гораздо лучше согласуются с полученными нами значениями, чем соответствующие величины для QEW-моделей, находящиеся в интервале от 0.21 до 0.33.

Слабая зависимость $\overline{\langle \partial S_{i,aval}(t) / \partial t \rangle}$ от критического параметра, установленная в результате интерпретации экспериментальных данных, обусловлена влиянием сомножителя $z - 1 - \alpha$ в приведенном выше выражении, устанавливающем взаимосвязь между критическими индексами δ и z, α . Отметим, что в работе [10], посвященной исследованиям масштабных свойств границы раздела жидкой и газовой фаз с использованием численного моделирования на основе DPD-моделей и натурных экспериментов (капиллярный подъем жидкости в листах бумаги), определено значение критического индекса $\alpha \approx 0.63$. Значение динамического критического индекса z для критических систем, аналогичных рассматриваемым, обычно принимается равным приблизительно 14/9 [11, 20]. При данном значении динамического критического индекса величина $z - 1 - \alpha$ характеризуется близким к нулю значением, хотя в работе [10] приводятся меньшие значения z (в частности, для двумерных систем на основании результатов моделирования принято значение 1.01). С другой стороны, в работе [20] на основании установленного в эксперименте значения $\theta > 1$ высказывается предположение о больших по сравнению с 14/9 значениях динамического критического индекса.

Полученное нами для образца ФС значение $\gamma \approx 0.57$ существенно меньше, чем значение критического индекса $\nu = \nu_{\parallel}$, определенное в результате численного моделирования на основе двумерной DPD-модели [10, 11] ($\nu_{\parallel} \approx 1.73$). С другой стороны, анализ уравнения Кардара–Паризи–Жанга методом ренормгруппы [28] приводит к следующему соотношению между ν и α : $\nu = 1/(2 - \alpha)$. Таким образом, в данном случае при $\alpha \approx 0.63$ мы получаем $\nu \approx 0.73$, что удовлетворительно согласуется с полученным нами значением γ . Отметим также,

что существенное влияние на ν оказывает размерность системы; при $\xi_{\parallel}, \xi_{\perp} \leq H$, где H — толщина слоя, необходимо учитывать трехмерный характер движения границы в слое, что в соответствии с результатами моделирования [10] должно приводить к уменьшению $\nu_{\parallel}, \nu_{\perp}$ и возрастанию z . В любом случае вопрос о взаимосвязи γ и ν , а также о скейлинге средней скорости развития локальных нестабильностей границы при $f \rightarrow 0$ требует дальнейших экспериментальных и теоретических исследований.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в результате экспериментальных исследований критического поведения границ раздела жидкой и газовой фаз в неупорядоченных пористых слоях установлено незначительное влияние критического параметра f на динамику развития локальных нестабильностей границы (лавин). При этом развитие границы на стадии закрепления контролируется в основном зависимостью частоты возникновения локальных нестабильностей от критического параметра. Установленная в экспериментах слабая зависимость средней скорости развития локальных нестабильностей от f предположительно обусловлена малой величиной разности динамического критического индекса z и члена $1 + \alpha$, зависящего от структурных свойств развивающейся границы (в частности, ее фрактальной размерности). На микроскопическом уровне это обусловлено относительно слабым убыванием эффективного коэффициента диффузии жидкости в пористой среде по мере уменьшения критического параметра. Для исследованных неупорядоченных пористых образцов характерно значение критического индекса средней скорости, меньшее единицы, что соответствует конечному времени протекания процесса закрепления границы (в отличие от пористых сред на основе плотноупакованных монодисперсных сферических частиц, характеризуемых более высокой степенью структурной упорядоченности). Полученные результаты представляют интерес с точки зрения описания транспортных свойств пористых систем различной природы в случае критического режима переноса жидкой фазы в подобных объектах.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 07-02-01467а).

ЛИТЕРАТУРА

1. S. Bhattacharya, M. J. Higgins, and J. P. Stokes, Phys. Rev. Lett. **63**, 1503 (1989).
2. P.-Z. Wong and J. W. Cable, Phys. Rev. B **28**, 5361 (1983).
3. J. P. Stokes, M. J. Higgins, A. P. Kushnick et al., Phys. Rev. Lett. **65**, 1885 (1990).
4. J. Koplik and H. Levine, Phys. Rev. B **32**, 280 (1985).
5. T. Natterman, S. Stepanow, L.-H. Tang et al., J. de Phys. II **2**, 1483 (1985).
6. O. Narayan and D. S. Fisher, Phys. Rev. B **48**, 7030 (1993).
7. Д. Ю. Иванов, *Критическое поведение неидеализированных систем*, Физматлит, Москва (2003), § 1.2.
8. S. V. Buldyrev, A.-L. Barabási, S. Havlin et al., Phys. Rev. A **45**, R8313 (1992).
9. L.-H. Tang and H. Leschhorn, Phys. Rev. A **45**, R8309 (1992).
10. L. A. N. Amaral, A.-L. Barabási, S. V. Buldyrev et al., Phys. Rev. E **51**, 4655 (1995).
11. L. A. N. Amaral, A.-L. Barabási, H. A. Makse et al., Phys. Rev. E **52**, 4087 (1995).
12. T. H. Kwon, A. E. Hopkins, and S. E. O'Donnell, Phys. Rev. E **54**, 685 (1996).
13. Д. А. Зимняков, П. В. Захаров, В. А. Трифонов и др., Письма в ЖЭТФ **74**, 237 (2001).
14. D. A. Zimnyakov, A. P. Sviridov, L. V. Kuznetsova et al., Appl. Opt. **45**, 4480 (2006).
15. Р. Отнес, Л. Эноксон, *Прикладной анализ временных рядов*, Мир, Москва (1982).
16. E. W. Washburn, Phys. Rev. **17**, 273 (1921).
17. D. J. Durian, D. A. Weitz, and D. J. Pine, Science **52**, 686 (1991).
18. D. J. Durian, D. A. Weitz, and D. J. Pine, Phys. Rev. A **44**, R7902 (1991).
19. A. Marmur and R. D. Cohen, J. Colloid and Interface Sci. **189**, 299 (1997).
20. T. Delker, D. B. Pengra, and P. Z. Wong, Phys. Rev. Lett. **76**, 2902 (1996).
21. M. Alava and K. Niskanen, Rep. Progr. Phys. **69**, 669 (2006).
22. O. Zic, T. Kustanovich, E. Moses, and Z. Olami, Phys. Rev. E **58**, 689 (1998).
23. Спектроскопия оптического смешения и корреляция фотонов, под ред. Г. Каммиса, Э. Пайка, Мир, Москва (1978).
24. А. Исимару, *Распространение и рассеяние волн в случайно-неоднородных средах*, т. 2, Мир, Москва (1981).
25. Д. А. Зимняков, Л. В. Кузнецова, О. В. Ушакова, Р. Мюллюля, КЭ **37**, 9 (2007).
26. Z. Csahók, K. Honda, and T. Vicsek, J. Phys. A **26**, L171 (1993).
27. R. Bruinsma and G. Aeppli, Phys. Rev. Lett. **52**, 1547 (1984).
28. G. Grinstein and S. K. Ma, Phys. Rev. B **28**, 2588 (1983).