

研究论文

DOI: 10.11949/j.issn.0438-1157.20171068

直流脉冲电场下液滴-界面聚并行为

李彬^{1,2}, 任瑞娟¹, 孙治谦¹, 王振波¹, 李晓宇¹, 金有海¹

(1 中国石油大学(华东)重质油国家重点实验室, 山东 青岛 266580; 2 利兹大学化学工程学院, 英国 利兹 LS2 9JT)

摘要: 为了深入探究直流脉冲电场下液滴-界面聚并行为, 针对去离子水作为分散相、葵花油作为连续相的体系, 分别改变电场参数(电场强度、频率、波形)和物性参数(界面张力、电导率、液滴粒径、固体颗粒)进行显微实验研究, 得到了液滴-界面聚并机制及各参数的影响规律。实验结果表明, 液滴-界面存在完全聚并和不完全聚并两种机制, 决定因素是泵吸和颈缩过程的相互作用。电场强度增大, 不完全聚并程度增大, 而电场频率的作用则相反, 这与电场力大小和液滴稳定程度有关。随表面活性剂浓度增大, 二次液滴急剧增大, 超过临界胶束浓度后, 小幅减小。随电导率和 SiO₂ 浓度增大, 不完全聚并程度均先增大后减小, 而随液滴粒径增大, 不完全聚并程度持续增大。大部分工况下, 液滴在直流稳恒电场下不完全聚并程度高于直流脉冲电场。为脉冲静电破乳机理的深入探讨及高效紧凑脉冲电脱盐脱水设备的研发奠定了理论基础。

关键词: 脉冲电场; 静电聚结; 油水界面; 二次液滴

中图分类号: TE 642.1

文献标志码: A

文章编号: 0438—1157(2018)02—0815—08

Drop-interface electrocoalescence under pulsatile electric fields

LI Bin^{1,2}, REN Ruijuan¹, SUN Zhiqian¹, WANG Zhenbo¹, LI Xiaoyu¹, JIN Youhai¹

(1 State Key Laboratory of Heavy Oil, China University of Petroleum (East China), Qingdao 266580, Shandong, China;

2 School of Chemical and Process Engineering, University of Leeds, Leeds LS2 9JT, UK)

Abstract: In order to investigate the drop-interface coalescence mechanism under pulsatile electric fields, micro-experiments were conducted on the effect of electrical parameters (electric field intensities, frequencies and waveforms) and physical parameters (surface tension, conductivity, primary droplet size and SiO₂ particles) with deionized water as dispersed phase and sunflower oil as continuous phase. The results show that two mechanisms exist, *i.e.* complete coalescence and partial coalescence, during drop-interface coalescence. The dominant factor is the competition of pumping and necking process. Partial coalescence is enhanced with increasing field strengths, while it is decreased with increasing frequencies. This is resulted from the strength of electrostatic force and the stability of droplets under pulsatile fields. With increasing surfactant concentrations, secondary droplets increase rapidly. When the concentration is higher than that of the critical micelle, secondary droplets decrease slightly. With increasing conductivities and SiO₂ concentrations, partial coalescence is enhanced first and then decreases. On the other hand, with increasing primary droplet sizes, partial coalescence increases continuously. Among the waveforms utilized in the experiments, constant DC wave has the highest partial coalescence while sawtooth wave

2017-08-08 收到初稿, 2017-10-20 收到修改稿。

联系人: 王振波。第一作者: 李彬(1990—), 男, 博士研究生。

基金项目: 中国国家公派留学基金项目(201606450040); 国家自然科学基金项目(21406267); 山东省自然科学基金项目(ZR2014BL029); 中央高校基本科研业务费专项资金项目(16CX06014A); 重质油国家重点实验室资助项目(SLKZZ-2017013)。

Received date: 2017-08-08.

Corresponding author: Prof. WANG Zhenbo, wangzbb@upc.edu.cn

Foundation item: supported by the China Scholarship Council (201606450040), the National Natural Science Foundation of China (21406267), the Natural Science Foundation of Shandong Province (ZR2014BL029), the Fundamental Research Funds for the Central Universities(16CX06014A) and the State Key Laboratory of Heavy Oil Processing (SLKZZ-2017013).

has the lowest. The outcome of this work is potentially useful for optimizing the design of compact and efficient oil-water separators.

Key words: pulsatile fields; electrocoalescence; oil-water interface; secondary droplet

引 言

随着油田开发进入中后期, 油田采油难度骤增。在石油开采过程中, 油田采出液含水率愈来愈高, 尤其近年来蒸汽辅助重力泄油 (SAGD) 技术的应用, 使得含水率有的高达 90%^[1-2]。随着采油井年限的增加, 采出液含水率逐年递增^[3]。聚合物驱采油的应用, 使采出原油含水率增加的同时, 物性也变得更为复杂。原油中含有大量的胶质、沥青质、蜡质等天然乳化剂^[4], 采出液在开采过程中即已形成稳定的油水乳状液。原油中的盐类易溶于水中, 高含水即高含盐, 给石油炼化行业带来了诸如设备腐蚀、催化剂中毒、运输成本增加等问题^[5-7]。

原油脱盐、脱水方法主要有化学破乳法、过滤法、重力沉降法、离心分离法、超声波法、微波辐射法、磁场处理法、热处理法和电脱水法等^[8-13], 其中, 由 Bailes 等^[14-16]提出的脉冲电破乳技术具有良好的破乳脱水效果。电破乳脱水方法原理是, 连续相 (油相) 和分散相 (水相) 电导率存在巨大差异, 施加电场后, 小液滴在电场力的作用下聚并成大液滴, 加快了水相从油相中分离的速度^[17]。液滴-界面聚并^[18-24]主要包括两个过程, 即液滴-界面间的相互靠近过程和液膜薄化过程。液膜薄化速率的主要影响因素是电毛细管压和楔裂压, 而 Marangoni 效应对电聚结过程起负作用^[25]。当液膜薄化到临界厚度时, 任何外界波动都会促使液膜的破碎和液滴聚并的发生, 故液膜薄化是液滴-界面聚并过程的决定性步骤^[23]。施加外电场后, 液滴迁移及液膜薄化过程均显著增强, 聚并过程急剧加快。若外场强或液滴粒径过大, 液滴易发生破碎现象, 液滴-界面电聚并过程伴随有微小的二次液滴产生^[22-24]。液膜破碎过程中, 过大的内部压力促使液滴表面形成一个液柱, 液柱直径急剧减小至液柱周长小于液柱高度。此时, 若受到 Rayleigh 波干扰, 液滴随即破碎成一系列微小的二次液滴^[26], 油水分离难度增大。为解决二次液滴带来的静电破乳难题, 亟需从实验和理论分析等各方面着手进行研究。近年来, 一些学者对液滴-界面电聚并过程进行了相应研究^[18-24], 但主要聚焦于揭示其机理, 对聚并过程和影响参数的研

究过于单一, 并不系统, 至今尚无脉冲电场下液滴-界面聚并影响因素深入而全面的分析, 工程价值较低。基于此, 本文进行显微实验, 全面考察直流脉冲电场下电场参数 (电场强度、电场频率和电场形式) 和物性参数 (表面活性剂、电导率、液滴粒径和固体颗粒) 对液滴-界面聚并行为的影响规律, 为脉冲静电破乳机理的深入探讨及高效紧凑脉冲电脱盐脱水设备的研发奠定理论基础。

1 实验材料和方法

显微实验中, 采用去离子水作为分散相, 透光性较好的葵花油作为连续相, 测试系统见图 1。常温下 (25℃) 分散相和连续相液体的理化性质如表 1 所示。实验单元 (90 mm×25 mm×80 mm) 如图 2 所示, 材料为有机玻璃, 电极材料为黄铜, 电极形式为平板电极, 上部电极为高压电极, 下部电极接地, 高压电极与接地电极相距 60 mm。利用 Hamilton 显微注射器经由高压电极板中部小孔, 产生实验用液滴, 液滴粒径介于 (576±2)~(1196±2) μm 之间。注射器接地, 以确保实验用液滴不带电。实验采用电压、频率、波形连续可调的 TREK 20/20C 脉冲直流电源。显微成像系统由 Photron FASTCAM SA5 型高速摄影仪 (配备 NAVITAR 12 × Zoom Lens 型镜头)、计算机以及 Image J 图像处理分析软件组成, 用以记录实验过程中的图像信息, 并通过后处理软件量化实验结果。实验中高速摄影仪速率采用

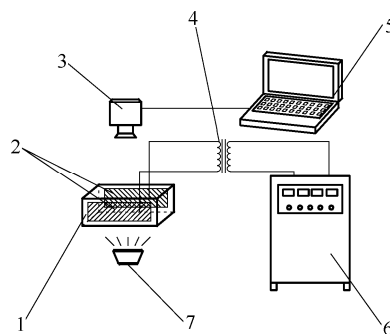


图 1 微观实验测试系统

Fig.1 Experimental set-up of microscopic test

1—experimental cell; 2—electrical plate; 3—high speed camera; 4—transformer; 5—image and video data processing system; 6—pulsatile electric power-supply system; 7—light source

表1 实验所用液体理化性质汇总

Table 1 Physical properties of liquids

Liquid	Conductivity ($\pm 5\%$)/ $\mu\text{S}\cdot\text{m}^{-1}$	Viscosity /mPa·s	Density /kg·m ⁻³	Dielectric constant
deionized water	5.49	1.0	1000	80.0
sunflower oil	7.62×10^{-5}	46.5	922	4.9

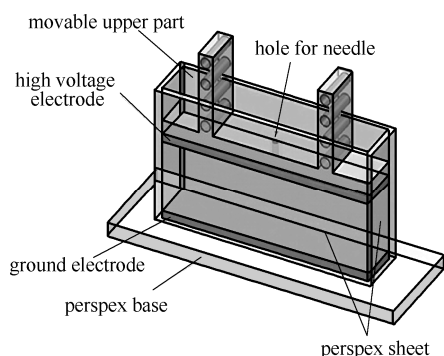


图2 实验单元

Fig.2 Experimental cell

20000 帧/秒, 聚焦于油水界面。光源采用 Dedolight DLHM4-300 型卤素灯。电导率由 Model 470 型电导率仪测得, 黏度由 Bohlin CVO 型流变仪测得, 密度由体积法^[23]测得, 界面张力由 KSV CAM 200 型界面张力仪测得, 介电常数由 Keysight 介电常数仪测得。实验中用到的直流脉冲电场波形(正弦波、锯齿波和矩形波)如图3所示。实验在室温(25 ± 2)℃下进行, 且每组实验进行3次重复实验。

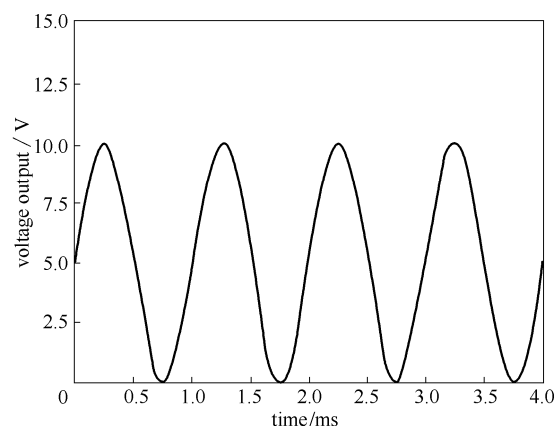
2 实验结果与讨论

2.1 液滴-界面聚并机制

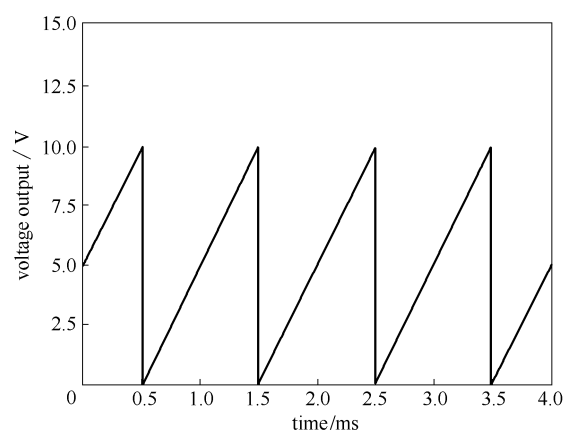
如图4所示, 液滴-界面聚并有两种机制, 完全聚并[图4(a)]和不完全聚并[图4(b)]。施加外电场后, 油水界面和液滴均在电场力的作用下发生变形[图4(b)iii]。液滴在电场中发生极化, 并逐渐靠近界面, 液滴和界面间的电场强度呈指数增大。当液滴和界面间距足够小时, 电钳位作用产生^[27], 液滴和界面间出现一个狭窄的纽带, 如图4(b)iv所示。液滴随即荷电, 且极性与油水界面相同, 液滴和界面间产生库仑斥力^[22]。将水滴和界面近似看作两个电量分别为 q 、 q' , 位置分别为 r 、 r' 的点电荷, 则液滴和界面间的库仑斥力表达式为

$$F = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{qq'(r-r')}{|r-r'|^3} \quad (1)$$

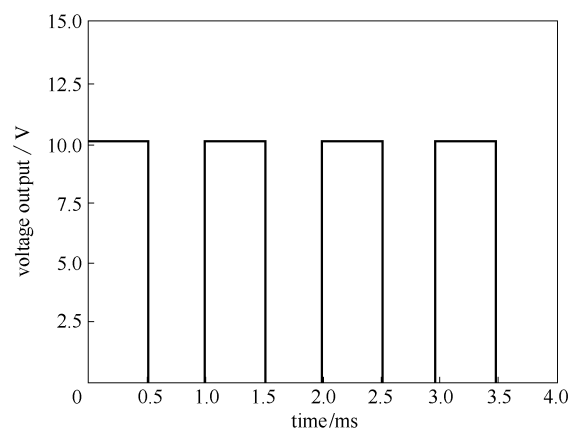
式中, ϵ_0 为真空电容率, 值为 $8.854\times 10^{-12} \text{ F}\cdot\text{m}$ 。然而, 由于油水界面张力[式(2)]的作用, 液滴并未



(a) half-sinusoidal wave



(b) sawtooth wave



(c) square wave

图3 实验用波形

Fig.3 Waveforms generated by the high voltage unit

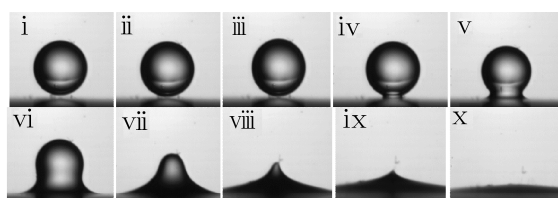
在斥力的作用下远离界面, 而是被界面聚并, 纽带快速增宽, 如图4(a) v、vi和(b) v、vi所示。

$$\sigma = \gamma \left(\frac{1}{R'_1} + \frac{1}{R'_2} \right) \quad (2)$$

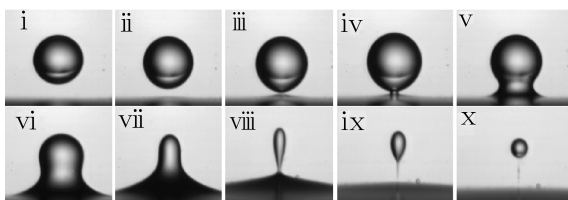
式中, R'_1 为液滴曲率半径, R'_2 为界面曲率半径, γ 为界面张力系数, σ 为界面张力。影响界面张力系数的因素主要有3个: ① 分子间作用力, 一般化学

键越强,界面张力越大;② 温度的影响,温度升高,界面张力下降,当达到临界温度 T_c 时,界面张力趋于零;③ 压力的影响,界面张力一般随压力的增加而下降。

液滴-界面聚并包含两个过程:泵吸过程和颈缩过程^[23]。泵吸过程是由于界面张力引起的,利于液滴-界面聚并,如图 4(b)iii~vi 所示;颈缩过程是由于液滴和界面间相斥的电场力引起的,产生难以聚并分离的微小二次液滴,对液滴-界面聚并不利,如图 4(b)vii~x 所示。泵吸过程占主导时,液滴-界面完全聚并;颈缩过程占主导时,液滴-界面不完全聚并。如图 4(a)所示,泵吸过程占主导,虽然发生了颈缩过程,液滴顶端愈来愈尖[图 4(a)viii、ix],但最终在界面张力的作用下,发生完全聚并。完全聚并时,泵吸过程的速度远高于颈缩过程,库仑力强度远小于界面张力。



(a) $E=67 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, complete coalescence



(b) $E=200 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, partial coalescence

图 4 液滴-界面聚并过程(实验条件:直流电场,液滴初始粒径 $D=(984 \pm 2) \mu\text{m}$)

Fig.4 Sequence of droplet-interface coalescence for droplet of $(984 \pm 2) \mu\text{m}$ under constant DC electric fields

当外加电场增大时,库仑斥力增大,颈缩过程显著增强,占据主导作用后,即发生不完全聚并,如图 4(b)所示,且场强越大,颈缩过程越明显,二次液滴体积越大。颈缩过程的强度和速率决定了二次液滴的体积大小。在不完全聚并过程中,泵吸过程和颈缩过程是一组反过程。另外,值得注意的是,二次液滴的尾部长短和电场强度也有关系。场强越大,尾部越长。原因是,液滴在强库仑斥力作用下,迅速上移,极大地拉长了纽带,破碎成一系列长微小液滴。不完全聚并减弱了电聚结器的分离效率。

本文将全面考察电场参数和物性参数对液滴-界面聚并行为的影响规律,以期得到抑制二次液滴产生的工况。为量化实验结果,本文采用二次液滴体积与初始液滴体积比值 ($V_{\text{sec}} / V_{\text{ini}}$) 表征液滴-界面不完全聚并程度^[23]。

2.2 电场参数的影响

2.2.1 电场强度的影响 实验考察了直流稳恒电场、锯齿波电场、正弦波电场和矩形波电场下电场强度对液滴-界面不完全聚并程度的影响。实验中,保持脉冲电场频率为 10 Hz,初始液滴粒径为 $(984 \pm 2) \mu\text{m}$ 。由图 5 可知,在低电场强度下 ($E < 150 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$),液滴-界面完全聚并。随着场强增大,液滴-界面发生不完全聚并,二次液滴体积随之增大。原因之一如上所述,低场强下,泵吸作用占主导,而高场强下颈缩作用占主导。另外,场强增大,液滴变形度增大,靠近界面的液滴端被急剧拉伸[图 4(b)iii],液滴界面膜不稳定,易破碎。文献[28]指出,不同波形电场的有效值(RMS 值)不同,导致相同峰值电压下的电场强度不同。有效值越高,场强越大,二次液滴体积越大。实验中用到的各波形有效值见表 2。由图 5 可知,直流稳恒电场不完全聚并程度($E=400 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$ 除外)高于直流脉冲电场。高场强时 ($E=400 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$),正弦波电场的不完全聚并程度最大,且高于直流稳恒电场,原因是 3 种不同波形脉冲电场中,正弦波电场的平均值最大(表 2),相同峰值电压下的场强最大,二次液滴体积最大。另外, $E=400 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$ 时,电场强度过大,直流稳恒电场下液滴-界面接触瞬间产生的大二次液滴发生了部分破碎。

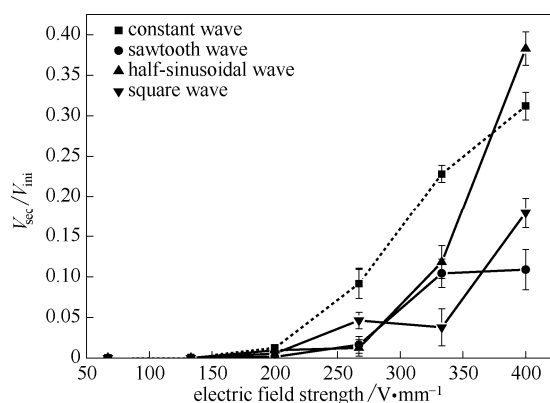


图 5 电场强度对不完全聚并程度的影响[直流脉冲电场, $f=10 \text{ Hz}$, $D=(984 \pm 2) \mu\text{m}$]

Fig.5 Effect of electric field strengths on normalized volume of secondary droplets under pulsatile electric fields [$f=10 \text{ Hz}$, $D=(984 \pm 2) \mu\text{m}$]

表2 不同波形电场的有效值及平均值汇总

Table 2 Theoretical RMS values of different electric field waveforms

Wave form	RMS	Average
half-sinusoidal	$E_0(\sqrt{2}/2)$	$E_0(\pi/2)$
square	$E_0(\sqrt{2}/2)$	$E_0/2$
sawtooth	$E_0(\sqrt{3}/3)$	$E_0/2$
constant	E_0	E_0

2.2.2 电场频率的影响 实验中,保持电场强度为 $267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, 初始液滴粒径为 $(984 \pm 2) \mu\text{m}$ 。由图7可知,随电场频率增加,3种波形的二次液滴体积均先大幅减小 ($f < 50 \text{ Hz}$),后缓慢减小到0的渐进值。原因在于,低频下 ($f < 50 \text{ Hz}$),电场周期长,电场弛豫时间长于液滴机械弛豫时间^[21],库仑斥力有足够的时间作用在液滴-界面聚并过程中,颈缩作用明显,不完全聚并程度高。图6给出了一个典型的直流脉冲电场周期,包括上升期(t_r)、稳恒期(t_{on})、下降期(t_f)和休止期(t_{off})4个阶段,电场弛豫时间即为 t_f 。施加脉冲电场后(t_r),液滴沿电场方向拉伸;在 t_{on} 阶段,液滴呈椭球形;在 t_f 阶段,变形液滴开始向球形回复。电场弛豫时间长于机械弛豫时间,则液滴能够回复初始球形状态^[21]。在上述过程中,表面张力、惯性力和黏滞力阻碍了液滴的变形,而电荷转移和极化过程促进了液滴的变形。若电场弛豫时间长于机械弛豫时间,则液滴能够跟随电场频率发生振荡过程。增加电场频率至电场弛豫时间短于机械弛豫时间,液滴将不能再跟随电场频率发生完整的振荡过程。

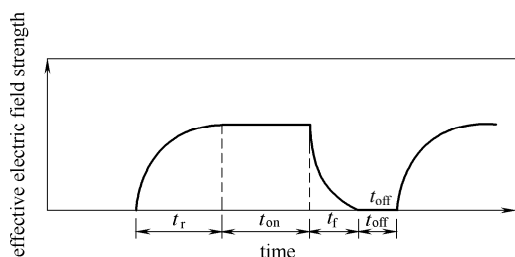


图6 典型直流脉冲电场周期

Fig.6 Schematic diagram of typical waveform with four time periods

随频率增加,电场周期逐渐减小,颈缩作用逐渐减弱,二次液滴体积逐渐减小。当频率增加到临界点(电场弛豫时间等于液滴机械弛豫时间)时,继续升高频率($50 \sim 1000 \text{ Hz}$),库仑斥力作用时间不充分,颈缩作用微弱,由界面张力产生的泵吸作

用占据主导,液滴-界面趋于完全聚并。另外,随频率增加,液滴的变形度和振荡幅度均明显下降^[29],液滴相对于低频下更加稳定,不易破碎。上述原因也解释了图7中直流稳恒电场不完全聚并程度($f=1 \text{ Hz}$ 除外)高于直流脉冲电场的现象。低频下 ($f=1 \text{ Hz}$),电场作用时间足够长,且液滴在变频电场下发生振荡,界面膜强度降低,故正弦波电场下液滴-界面不完全聚并程度高于直流稳恒电场。综合图5和图7,大部分工况下,液滴在直流稳恒电场下不完全聚并程度高于直流脉冲电场。

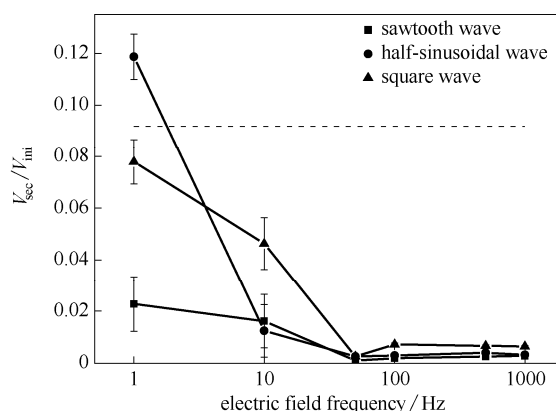


图7 电场频率对不完全聚并程度的影响[直流脉冲电场, $E=267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, $D=(984 \pm 2) \mu\text{m}$; 虚线为直流稳恒电场参照实验]

Fig.7 Effect of electric field frequencies on normalized volume of secondary droplets under pulsatile electric fields [$E=267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, $D=(984 \pm 2) \mu\text{m}$; comparison with constant DC fields]

2.3 物性参数的影响

2.3.1 界面张力的影响 为了不影响体系的电学性质,实验中选用3种非离子型表面活性剂,即 Tween 20 (聚氧乙烯脱水山梨醇单月桂酸酯)、Tween 80 (聚氧乙烯脱水山梨醇单油酸酯)和 TMN 6 (支链仲醇乙氧基化物),进行界面张力对液滴-界面聚并的影响研究。3种表面活性剂均为水溶性物质。界面张力和3种表面活性剂浓度的关系如图8所示,Tween 20 体系的界面张力最小, TMN 6 体系最大。3种体系的界面张力均随表面活性剂浓度的增大,先显著减小 ($0 \sim 250 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$),后减小幅度放缓 ($250 \sim 500 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$),最后缓慢减小 ($500 \sim 1000 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$)。尤其 Tween 20 体系,在 $500 \sim 1000 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 范围内,界面张力基本保持恒定。原因是,当表面活性剂浓度大于临界胶束浓度 (CMC)^[30] (本体系中 Tween 20 为 $600 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、Tween 80 为 $800 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、TMN 6 为 $950 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 时,多余的表面活性剂形成

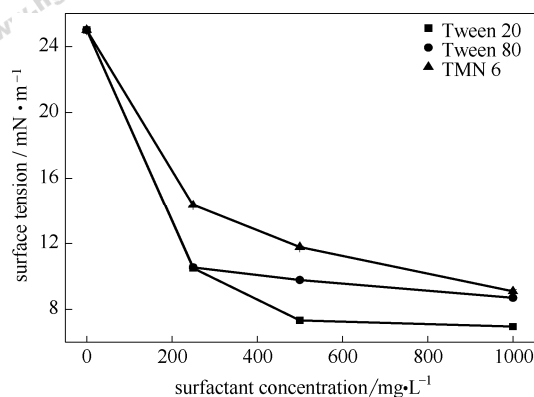
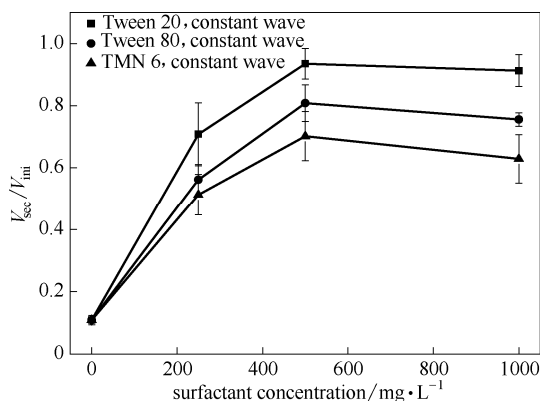


图 8 界面张力和表面活性剂浓度的关系

Fig.8 Evolution of surface tension with surfactant concentration

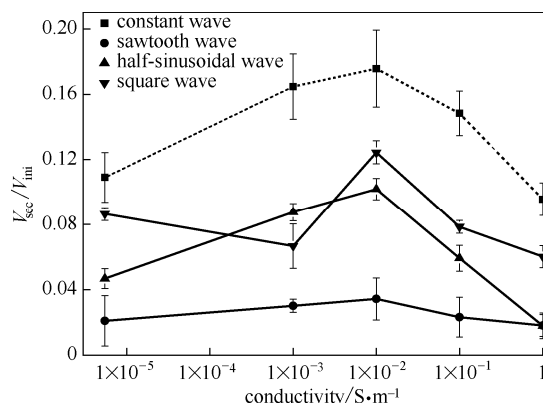
胶束,分散在体系中。

图 9 给出了表面活性剂浓度对液滴-界面聚并程度的影响,由图可知,随浓度增大,二次液滴体积先急剧增大,后增大幅度放缓,最后呈小幅减小的趋势,与图 8 中界面张力变化的 3 个阶段基本一致。界面张力减小,界面膜易破碎,形成二次液滴。当浓度大于 CMC 时,表面活性剂形成的胶束分散在体系中或者附着在界面膜上,增大了界面膜的强度^[30],故在高浓度下出现了二次液滴小幅减小的趋势。另外,由图 9 可知,Tween 20 体系的不完全聚并程度最大,其次 Tween 80 体系,TMN 6 体系最小,与图 8 一致。

图 9 表面活性剂浓度对不完全聚并程度的影响[直流稳恒电场, $E=267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, $D=(1196 \pm 2) \mu\text{m}$]Fig.9 Effect of surfactant concentration on normalized volume of secondary droplets under constant DC electric fields [$E=267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, $D=(1196 \pm 2) \mu\text{m}$]

2.3.2 电导率的影响 油田采出液中含有大量盐类,故电导率对电脱水影响的研究具有重要的工程意义^[31]。实验中通过往体系中添加氯化钠改变电导率,电导率对二次液滴体积大小的影响规律示于图 10。由图可知,随电导率增大,除矩形波电场 ($1 \times$

$10^{-3} \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$) 外,不完全聚并程度均先增大后减小,与 Vivacqua 等^[24]的研究结果一致。电导率对聚并程度影响的主要因素是电荷转移机制^[24]。电导率增大,电荷转移速度加快。液滴临近油水界面处的表面电荷迅速转移至水相中,造成液滴远端点瞬时电荷远高于近端点瞬时电荷,电荷差的存在加大了静电斥力的强度,二次液滴体积增大。另外,电导率增大,由外电场诱发的液滴偶极矩增大,变形度增大,液滴不稳定,易破碎成二次液滴。然而,此作用在高电导率下被削弱^[24]。值得注意的是,不同电导率下,液滴在直流稳恒电场下的不完全聚并程度均高于直流脉冲电场。

图 10 电导率对不完全聚并程度的影响[直流脉冲电场, $E=267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, $f=10 \text{ Hz}$, $D=(1196 \pm 2) \mu\text{m}$]Fig.10 Effect of conductivity on normalized volume of secondary droplets under pulsatile electric fields [$E=267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, $f=10 \text{ Hz}$, $D=(1196 \pm 2) \mu\text{m}$]

2.3.3 初始液滴粒径的影响 实验中研究了 $(576 \pm 2) \sim (1196 \pm 2) \mu\text{m}$ 范围内,初始粒径大小对液滴-界面聚并的影响,结果如图 11 所示。由图可知,随初始液滴粒径增大,不完全聚并程度增大。根据 Young-Laplace 方程[式(3)],液滴初始粒径愈大,内外压差愈小,液滴在电场作用下变形愈大,液滴愈不稳定,愈易发生破碎,愈易产生二次液滴。

$$\Delta p = \frac{4\sigma}{D} \quad (3)$$

式中, Δp 为液滴内外压差, σ 为界面张力, D 为初始液滴直径。另外,大液滴在电场中极化作用明显,颈缩作用显著,界面膜强度降低,更易形成大二次液滴^[22]。

2.3.4 固体颗粒的影响 油田采出液中泥沙含量愈来愈高,大颗粒可通过预脱水过程一并去除,但微小泥沙颗粒掺杂于油水乳状液中,难以去除。因此,针对微小固体颗粒对电脱过程影响的研究具有极大

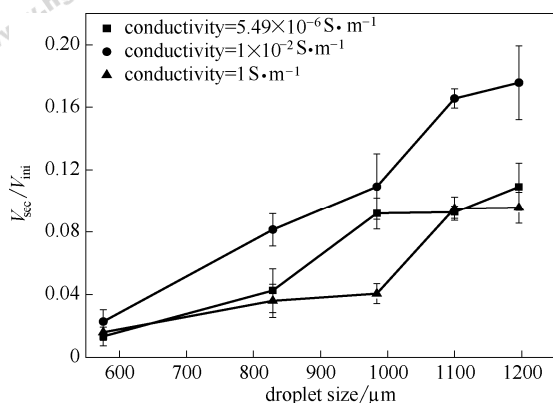


图 11 初始液滴粒径对不完全聚并程度的影响
(直流稳恒电场, $E=267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$)

Fig.11 Effect of primary droplet size on normalized volume of secondary droplets under constant electric fields
($E=267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$)

的工程价值。泥沙的主要成分为二氧化硅 (SiO_2), 故笔者采用粒径约为 20 nm 的 SiO_2 颗粒进行显微实验研究。二氧化硅浓度对液滴-界面聚并程度的影响如图 12 所示, 由图可知, 随浓度增大, 不完全聚并程度先增大后减小。原因在于, 脉冲电场下, 随浓度增大, SiO_2 颗粒对界面膜的冲击作用剧烈, 界面膜强度随之下降, 二次液滴体积增大。随 SiO_2 浓度继续增大, 附着在液滴界面膜上的固体颗粒增多, 当附着层将液滴包覆完全后, 相当于液滴表面形成一层保护膜, 液滴膜强度增大, 二次液滴减少。

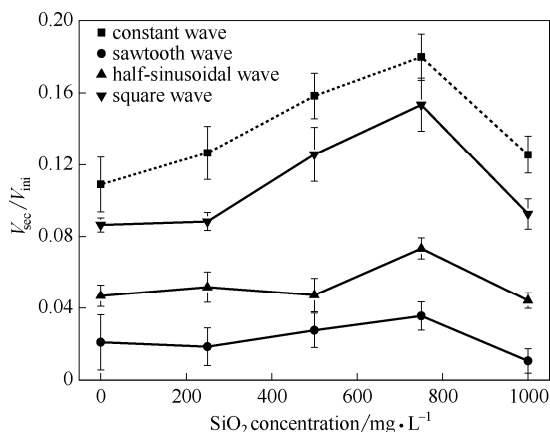


图 12 SiO_2 浓度对不完全聚并程度的影响[直流脉冲电场, $E=267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, $f=10 \text{ Hz}$, $D=(1196 \pm 2) \mu\text{m}$]

Fig.12 Effect of SiO_2 concentration on normalized volume of secondary droplets under pulsatile electric fields
[$E=267 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$, $f=10 \text{ Hz}$, $D=(1196 \pm 2) \mu\text{m}$]

值得注意的是, 与图 10 揭示的波形效果基本一致(矩形波电场 $1 \times 10^{-3} \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$ 除外), 图 12 亦表明不完全聚并程度的顺序为: 直流稳恒电场>矩形波>正弦波>锯齿波。液滴在直流稳恒电场下不完全

聚并程度高于直流脉冲电场, 与图 5 和图 7 所得一致。尽管 RMS 值相同, 但矩形波和正弦波在不同工况下呈现出不同的性能, 原因可能在于不同工况下的两种波形存在不同的聚并机制, 这也是作者下一阶段的研究工作。

3 结 论

本文采用去离子水作为分散相、葵花油作为连续相的体系进行显微实验, 考察了液滴-界面聚并的机制及电场参数(电场强度、电场频率和电场形式)和物性参数(表面活性剂、电导率、液滴粒径和固体颗粒)对聚并过程的影响。

(1) 液滴-界面聚并存在两种机制: 完全聚并机制, 此时界面张力引起的泵吸作用显著, 占主导作用; 不完全聚并机制, 此时库仑斥力引起的颈缩作用显著, 占主导作用。

(2) 随电场强度增大, 库仑斥力显著增大, 颈缩作用逐渐强于泵吸作用, 液滴-界面不完全聚并程度逐渐增大; 随电场频率增大, 电场弛豫时间减小, 颈缩作用微弱, 由界面张力产生的泵吸作用逐渐占据主导作用, 且高频下液滴变形度和振荡幅度均大幅减小, 液滴-界面趋于完全聚并; 大部分工况下, 与直流稳恒电场相比, 直流脉冲电场液滴不完全聚并程度降低。

(3) 表面活性剂显著降低界面张力, 提高液滴-界面不完全聚并程度; 随电导率增大, 电荷转移速度加快, 液滴偶极矩增大, 但此作用在高电导率下被削弱, 故不完全聚并程度先增大后减小; 液滴粒径愈大, 内外压差愈小, 液滴愈不稳定, 不完全聚并程度越大; 随 SiO_2 浓度增大, 不完全聚并程度先增大后减小。

符 号 说 明

- D —— 初始液滴粒径, μm
- E —— 高频脉冲电场强度, $\text{V} \cdot \text{mm}^{-1}$
- F —— 库仑斥力, N
- f —— 脉冲电场频率, Hz
- Δp —— 液滴内外压差, mPa
- R'_1 —— 液滴曲率半径
- R'_2 —— 界面曲率半径
- V_{ini} —— 初始液滴体积, μm^3
- V_{sec} —— 二次液滴体积, μm^3
- γ —— 界面张力系数
- ϵ_0 —— 真空电容率, $8.854 \times 10^{-12} \text{ F} \cdot \text{m}$
- σ —— 界面张力, $\text{mN} \cdot \text{m}^{-1}$

References

- [1] LI B, FAN Y, SUN Z, *et al.* Effects of high-frequency pulsed electrical field and operating parameters on dehydration of SAGD produced ultra-heavy oil[J]. *Powder Technol.*, 2017, **316**: 338-344.
- [2] LI B, SUN Z, WANG Z, *et al.* Effects of high-frequency and high-voltage pulsed electric field parameters on water chain formation[J]. *J. Electrostat.*, 2016, **80**: 22-29.
- [3] URDAHL O, NORDSTAD K, BERRY P, *et al.* Development of a new, compact electrostatic coalescer concept[J]. *SPE Production and Operations*, 2001, **16**: 4-8.
- [4] FORDEDAL H, SCHILDBERG Y, SJOBLUM J, *et al.* Crude oil emulsions in high electric fields as studied by dielectric spectroscopy. Influence of interaction between commercial and indigenous surfactants[J]. *Colloids Surf. A Physicochem. Eng. Asp.*, 1996, **106**: 33-47.
- [5] TSOURIS C, SHIN W T, YIACOUMI S, *et al.* Pumping, spraying, and mixing of fluids by electric fields[J]. *Can. J. Chem. Eng.*, 1998, **76**(3): 589-599.
- [6] 李彬, 孙治谦, 王振波, 等. 高频高压脉冲电场作用下水链形成与消散行为的实验研究[J]. *高校化学工程学报*, 2015, **29**(6): 1333-1339.
- LI B, SUN Z Q, WANG Z B, *et al.* The experimental study of water chain formation and dissipation in high-frequency and high-voltage pulsed electric field[J]. *Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities*, 2015, **29**(6): 1333-1339.
- [7] VIVACQUA V, GHADIRI M, ABDULLAH A M, *et al.* Compact electrocoalescer with conical frustum electrodes: US62425808[P]. 2016-11-24.
- [8] MOHAMMED R A, BAILE A I, LUCHHAM P F, *et al.* Dewatering of crude oil emulsions[J]. *Colloids and Surfaces A*, 1994, **83**(3): 261-271.
- [9] SUN D, JONG S C, DUAN X D, *et al.* Demulsification of water-in-oil emulsion by wetting coalescence materials in stirred-and- packed columns[J]. *Colloids and Surfaces A*, 1999, **150**: 69-75.
- [10] TAYLOR S E. Theory and practice of electrically-enhanced phase separation of water-in-oil emulsion[J]. *Trans. IChemE*, 1996, **74**(5): 526-540.
- [11] 樊玉新, 李彬, 孙治谦, 等. 高频脉冲电场下无机盐及电场参数对水滴成链特性的影响研究[J]. *高校化学工程学报*, 2016, **30**(2): 364-370.
- FAN Y X, LI B, SUN Z Q, *et al.* Impact of salts and high-frequency pulsed electric field parameters on water chain formation[J]. *Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities*, 2016, **30**(2): 364-370.
- [12] 樊玉新, 李彬, 孙治谦, 等. 无机盐浓度及种类对电脱水过程水滴极化的影响[J]. *化工学报*, 2016, **67**(8): 3297-3303.
- FAN Y X, LI B, SUN Z Q, *et al.* Effect of salt concentration and type on polarization and deformation of water droplet during electric dehydration[J]. *CIESC Journal*, 2016, **67**(8): 3297-3303.
- [13] HIRATO T, KOYAMA K, TANAKE T. Demulsification of water-in-oil emulsion by an electrostatic coalescence method[J]. *Mater. Trans. JIM*, 1991, **32**(3): 257-263.
- [14] BAILES P J, FREESTONE D, SAMS G W. Pulsed DC fields for electrostatic coalescence of water-in-oil emulsions[J]. *The Chem. Eng.*, 1997, **644**: 34-39.
- [15] BAILES P J, LARKAIS K L. Influence of phase ratio on electrostatic coalescence of water-in-oil dispersions[J]. *Chem. Eng. Res. Des.*, 1984, **62**(1): 33-38.
- [16] BAILES P J. An experimental investigation into the use of high voltage DC fields for liquid phase separation[J]. *Trans. I Chem. E.*, 1981, **59**(A): 229-237.
- [17] ATTEN P, LUNDGAARD L, BERG G. A simplified model of electrocoalescence of two close water droplets in oil[J]. *Journal of Electrostatics*, 2006, **64**: 550-554.
- [18] EOW J S, GHADIRI M, SHARIF A O, *et al.* Electrostatic enhancement of coalescence of water droplets in oil: a review of the current understanding[J]. *Chem. Eng. J.*, 2001, **84**(3): 173-192.
- [19] MHATRE S, VIVACQUA V, GHADIRI M, *et al.* Electrostatic phase separation: a review[J]. *Chem. Eng. Res. Des.*, 2015, **96**: 177-195.
- [20] VIVACQUA V, MHATRE S, GHADIRI M, *et al.* Electrocoalescence of water drop trains in oil under constant and pulsatile electric fields[J]. *Chem. Eng. Res. Des.*, 2015, **104**: 658-668.
- [21] MOUSAVI S H, GHADIRI M, BUCKLEY M, *et al.* Electro-coalescence of water drops in oils under pulsatile electric fields[J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2014, **120**: 130-142.
- [22] MOUSAVICHOUBEH M, GHADIRI M, SHARIATY-NIASSAR M, *et al.* Electro-coalescence of an aqueous droplet at an oil-water interface[J]. *Chem. Eng. Process.*, 2011, **50**(3): 338-344.
- [23] MOUSAVICHOUBEH M, SHARIATY-NIASSAR M, GHADIRI M. The effect of interfacial tension on secondary drop formation in electro-coalescence of water droplets in oil[J]. *Chem. Eng. Sci.*, 2011, **66**(21): 5330-5337.
- [24] VIVACQUA V, GHADIRI M, ABDULLAH A M, *et al.* Analysis of partial electrocoalescence by level-set and finite element methods[J]. *Chem. Eng. Res. Des.*, 2016, **114**: 180-189.
- [25] ROMMEL W, MEON W, BLASS E. Hydrodynamic modeling of droplet coalescence at liquid-liquid interfaces[J]. *Separation Science and Technology*, 1992, **27**: 129-159.
- [26] CHARLES G E, MASON S G. The mechanism of partial coalescence of liquid drops at liquid/liquid interfaces[J]. *Journal of Colloid Science*, 1960, **15**: 105-122.
- [27] GHADIRI M, MARTIN C M, ARTEAGA P A, *et al.* Evaluation of the single contact electrical clamping force[J]. *Chemical Engineering Science*, 2006, **61**(7): 2290-2300.
- [28] LESANT C, GLOMM W R, LUNDGAARD L E, *et al.* Dehydration efficiency of AC electrical fields on water-in-model-oil emulsions[J]. *Colloids Surf. A: Physicochem. Eng. Aspects*, 2009, **352**: 63-69.
- [29] VIVACQUA V, GHADIRI M, ABDULLAH A M, *et al.* Linear dynamics modeling of droplet deformation in a pulsatile electric field[J]. *Chem. Eng. Res. Des.*, 2016, **114**: 162-170.
- [30] HAKIKI F, MAHARSI D A, MARHAENDRAIANA T. Surfactant-polymer core flood simulation and uncertainty analysis derived from laboratory study[J]. *J. Eng. Technol. Sci.*, 2015, **47**(6): 706-724.
- [31] 孙治谦, 金有海, 王磊, 等. 高频脉冲电场参数对水滴极化变形的影响[J]. *化工学报*, 2012, **63**(10): 3112-3118.
- SUN Z Q, JIN Y H, WANG L, *et al.* Impact of high-frequency pulse electric field parameters on polarization and deformation of water droplet[J]. *CIESC Journal*, 2012, **63**(10): 3112-3118.