





# REOMETRIA FLUIDELOR COMPLEXE ÎN PREZENȚA SUPRAFEȚELOR STRUCTURATE



# PN-II-ID-PCE-2012-4-0245

### **RAPORT SINTETIC INTERMEDIAR II**

Etapa II – Decembrie 2014

#### Componența echipei științifice:

Prof. dr. ing. Corneliu Bălan (responsabil) Conf. dr. ing. Diana Broboană Asist. dr. ing. Nicoleta Tănase Drd. Ioana Omoncea Drd. Rodica Damian Drd. Mihaela Țurcanu

#### Administrație proiect: dr. ing. Sanda Osiceanu (Maiduc) ing. Aurelia Gheorghe

Universitatea "Politehnica" Bucuresti Laborator REOROM - Departamentul de Hidraulică, Mașini Hidraulice și Ingineria Mediului

#### Introducere

Scopul central al proiectului este investigarea, analiza și modelarea influenței suprafețelor structurate asupra caracterizării reologiei fluidelor complexe în teste reometrice.

În cadrul primei etape s-au stabilit fluidele de lucru și micro-geometriile ce urmează să fie folosite în investigațiile experimentale<sup>1</sup>. De asemenea, în prima etapă s-a definitivat structura platformei experimentale pentru studiul curgerii fluidelor în micro-canale cu suprafețe structurate.

Obiectivele celei de-a II-a etape au fost următoarele:

1. Stabilirea procedurii de testare a fluidelor complexe în prezența suprafețelor structurate,

2. Studiul și modelarea curgerii fluidelor complexe în vecinătatea suprafețelor structurate, cu următoarele activități principale:

- Măsurători și caracterizări reologice ale fluidelor complexe; prezentarea rezultatelor la Conferința Anuală a Societății Europene de Reologie (AERC 2014) și la Conferința Anuală a Societății Britanice de Reologie (BSR 2014);
- b) Stabilirea și testarea geometriilor optime structurate; analiza CFD a geometriilor structurate.

Aceste activități au fost completate de achiziția și testarea noului sistem de achiziție și prelucrare a imaginilor video asociate sistemului micro-PIV existent<sup>2</sup>.

Activitatea depusă s-a concretizat prin publicarea în acest an a 3 lucrări ISI și a unei cărți (aflată în proces de tipărire), rezultate știițifice care depășesc obiectivele stabilite inițial pentru a fi livrate în această etapă (1 Lucrare publicată, 1 Lucrarea înaintată spre publicare, 1 Carte publicată).

Din puctul nostru de vedere, principalul rezultat al acestei etape este confirmarea și validarea de către comunitatea științifică internațională a "ideii" ce stă la baza prezentului proiect: *folosirea reometriei în prezența suprafețelor cu micro-structuri controlate ca metodă și procedură pentru caracterizarea comportamentului reologic al fluidelor în vecinătatea pereților solizi.* 

În acest Raport sintetic aferent etapei a II-a se vor puncta căteva probleme tratate în lucrările publicate (cu precădere în lucrarea din JNNFM), cu referiri și completări la rezultatele intermediare încă nepublicate, aflate în stadiul de analiză și interpretare. Raportul se va încheia cu concluzii și prezentarea obiectivelor anului viitor.

#### 1. Caracterizarea reologică a fluidelor de lucru (obiectiv 1/activitatea 1.1)

În etapa precedentă s-au stabilit și s-au caracterizat fluidele de lucru. Dintre acestea o atenție specială a fost data uleiului de motor 10W50 (proba USA0.25<sup>1</sup>) aditivat cu poli-izobutilenă cu masa moleculară  $M_w = 0.5$  mil (proba PIB-M0.5-1<sup>1</sup>).

Măsurătorile efectuate (la 10 °C și 20 °C) au confirmat rezultatele precedente: viscozitatea nominală a uleiului este de 0.4 Pas la 10 °C și 0.275 Pas la 20 °C (fluidul fiind newtonian), iar soluția PIB are coeficienții de viscozitate  $\eta_0$  de 1.55 Pas la 10 °C și 0.9 Pas la 20 °C (fluidul fiind slab elastic, având un comportament de tip Boger<sup>1</sup>). În Fig. 1 se prezintă caracteristicile reologice pentru soluția PIB în testul de oscilație. Se observă dependența măsurătorilor atât de calitatea plăcii inferioare a

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Bălan C. et al. *Reometria fluidelor complexe în prezența suprafețelor structurate*, Raport etapa I, decembrie 2013

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> v. Planul de realizare a proiectului – etapa 2014 (unică), anexa IV la contractul de finanțare

reometrului, cât și de valoarea distanței dintre plăci (pentru detalii referitoare la testele experimentale și la influența suprafețelor structurate asupra măsurătorilor se recomandă consultarea lucrării publicate<sup>3</sup>).



**Fig. 1.** Dependența viscozității complexe (a) și a modulelor dinamice (b) de distanța dintre plăci și de calitatea plăcii inferioare (PN – placa originală a reometrului, *Si-plate* placă perfect netedă din siliciu). Testele s-au realizat cu amplitudinea constantă de 0.1[-] și frecvența de oscilație variabilă (geometrie placă-placă, diametrul plăcii fiind de 50 mm, distanța dintre plăci de 140  $\mu$ m și 180  $\mu$ m). Pentru referință se prezintă și testele efectuate cu geometria con-placă (CP, diametrul conului de 50 mm, unghiul de 1°). Uleiul de bază al soluției PIB are la temperatura de testare (20 °C) un comportament newtonian cu viscozitatea de 0.275 Pas.

Acest comportament reologic în mișcarea de forfecare era cunoscut calitativ din investigațiile precedente. În acestă etapă fluidele au fost caracterizate și în mișcarea extensională uni-axială, cu ajutorul reometrului specializat CaBER<sup>4</sup>, v. Fig. 2. Testele au fost efectuate în Laboratorul de Reologie al Companiei FRESENIUS-Kabi de către drd. Mihaela Țurcanu, membră a grupului REOROM.

Rezultatele obținute evidențiază influența remarcabilă a polimerului în mișcarea extensională, deci vor apărea modificări semnificative ale spectrului curgerii soluției de polimeri față de spectrul newtonian în mișcări pronunțat (dominant) elongaționale, v. Fig. 3 și Fig. 4. Acest lucru este de așteptat la fluidele slab aditivate cu viscozitate mică (așa cum este soluția testată PIB), în care elasticitatea nu se face simțită pregnant în mișcări dominant de forfecare (vezi Fig. 1.b. unde modulul elastic G' nu are valori mari, timpul de relaxare măsurat fiind mult mai mic decât unitatea). Urmează ca pe baza rezultatelor obținute în mișcarea uni-axială să se calculeze valorile corespunzătoare ale viscozității extensionale (a cărei variație este de așteptat să fie ne-monotonă). Așa cum se observă, viscozitatea de forfecare (v. Fig. 1.a) are un slab caracter *shear thinning*, semnificativ numai pentru viteze de forfecare mai mari de 10 s<sup>-1</sup>.

Având în vedere importanța deosebită pentru studiul nostru a caracterizării reologice corecte și complete a fluidelor slab aditivate cu polimeri (reprezentate aici de soluția PIB), corelarea celor

3

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> Broboana D., Tanase N.O., Balan C. (2014) *Influence of patterned surface in the rheometry of simple and complex fluids*, J. Non-Newtonian Fluid Mech., http://dx.doi.org/10.1016/j.jnnfm.2014.10.006

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> McKinley G.H. et al. (1999) *Extensional rheometry of polymeric fluids and the uniaxial elongation of viscoelastic filaments,* Plenary Paper Presented at 15th Annual Meeting of the International Polymer Processing Society;

<sup>&</sup>lt;u>http://www.thermoscientific.com/content/tfs/en/product/haake-caber-1-capillary-breakup-extensional-rheometer.html</u> (prezentarea dispozitivului și a procedurilor experimentale).

două viscozități într-un unic model reologic se constituie ca un obiectiv al etapei viitoare a proiectului. Se preconizează ca o parte din experimente să fie refăcute, având în vedere o posibilă contaminare în timp a fluidelor testate (cu precădere a soluției de polimeri), dar și temperaturile diferite folosite în testele de forfecare și de extensie (în acest ultim caz temperatura de testare nefiind controlabilă, ci doar măsurabilă).



**Fig. 2.** Reometrul CaBER bazat pe mișcarea extensională uni-axială cu suprafață liberă. Lichidul este poziționat între două plăci aflate inițial la distanța de 1 mm; la momentul t = 0 placa superioară se va deplasa cu viteză constantă până la o distanță prestabilită. Lichidul va dezvolta între cele două plăci un filament al cărui diametru se măsoară în timp printr-un sistem optic performant<sup>4</sup>, v. Fig. 3 și Fig. 4.



**Fig. 3.** Variația în timp a diametrului filamentului fluid în planul median pentru uleiul newtonian (solvent) și soluția solvent + PIB (fluidul viscoelastic). Diferența este evidentă și semnificativă între cele două probe atât cantitativ, cât și calitativ. Valorile sunt măsurate pe baza vizualizărilor prezentate în Fig. 4.

Time 0 ms 50 ms 75 ms 100 ms 500 ms	
-------------------------------------	--



**Fig. 4**. Vizualizarea filamentului pentru cele două probe la diferite intervale de timp. Filamentul newtonian se rupe la t < 100 ms, cel viscoelastic se păstrează și pentru t > 500 ms. Datele cantitative sunt prezentate în Fig. 3.

## 2. Stabilirea și testarea geometriilor optime structurate; analiza CFD a geometriilor structurate (obiectiv 2/activitățile 2.1 și 2.2)

În urma studiilor prezentate în Raportul<sup>1</sup> precedent, testele reologice din această etapă s-au realizat pentru două familii de microstructuri: (i) micro-cilindrii (dimensiunea nominală de 10  $\mu$ m), și (ii) micro-canale (dimensiunea nominală de 300  $\mu$ m), v. Fig. 5. Se preconizează ca aceste tipuri de suprafețe structurate să se folosească și în investigațiile viitoare din acest proiect.

Modelarea curgerii rotaționale în geometria placă – placă, în care placa inferioară fixă este prevăzută cu micro-canale, a pus în evidență existența micro-vârtejurilor (curgerilor secundare) în micro-canale, Fig. 6 și Fig. 7, ceea ce induce așa numitul fenomen de *hidrofobicitate dinamică*.

Hidrofobicitatea unei suprafețe<sup>5</sup> față de un lichid stabil chimic este de regulă definită în relație cu unghiul de contact static al unei picăturii pe suprafața respectivă: dacă unghiul de contact este mai mare de 90° suprafața este hidrofobă, fenomenul fiind accentuat cu cât unghiul de contact este mai apropiat de 180°. Definim conceptul de hidrofobicitate dinamică ca reducerea efortului de frecare la peretele solid, fenomen indus de prezența micro-structurilor peretelui, v. Fig. 8.

În acest caz, viscozitatea măsurată pentru plăci structurate va avea valori mai mici decât viscozitatea măsurată în cazul plăcilor netede, v. Fig. 9., mărimea care descrie cantitativ acest fenomen fiind lungimea  $b^*$ ,  $b^* = \left(\frac{\sigma_0^*}{\sigma_s^*} - 1\right)h$ , unde  $\sigma_0^*$  este efortul de frecare la perete în cazul geometriei netede și  $\sigma_s^*$  efortul măsurat în cazul geometriei structurate, *h* fiind distanța dintre plăci, v. Fig. 8.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> Zhao X.D., Xu G.Q., Liu X.Y. (2012) Superhydrophobic surfaces: beyond lotus effect, DOI 10.1007/978-1-4614-5372-7\_9



**Fig. 5.** Suprafețele structurate folosite în experimente: a) suprafață din silicon cu micro-cilindri uniform distribuiți (realizată la IMT Bucharest), b) placă metalică prevăzută cu micro-canale paralele (realizată la TU Darmstadt). Suprafețele structurate se montează pe placa inferioară a reometrului (fixă), placa superioară (mobilă) fiind netedă (c).



**Fig. 6.** Distribuția efortului de tangențial pentru un fluid newtonian (valorile descresc de la roșu la albastru): a) placa superioară mobilă, b) planul median (distanța dintre plăci:  $h = 100 \mu m$ , viteza de deformație aparentă:  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}, \eta_0 = 1.06 \text{ Pas}$ ).



**Fig. 7**. Reprezentarea curgerii secundare în micro-canale pentru fluidul newtonian și fluidele Carreau (cu valori diferite ale coeficientului *n*). Viteza de deformație aparentă este  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$ .



Fig. 8. Mișcarea cu forfecare simplă în vecinătatea suprafeței netede și structurate.

Măsurătorile din Fig. 9 dovedesc capacitatea suprafețelor micro-structurate de a induce fenomenul de hidrofobicitate dinamică la perete (definit uneori ca alunecare aparentă a fluidului la suprafața solidă). Modelarea CFD a curgerii asociate a dat rezultate foarte bune, în conformitate cu măsurătorile experimentale, v. Fig. 10. Studiul complet este prezentat în lucrarea publicată de autori în JNNFM<sup>3</sup>.

Rezultatele acestei etape sunt de importanță majoră pentru proiect și confirmă ipoteza inițială pe care prezenta cercetare exploratorie se bazează: suprafețele micro-structurate se pot folosi pentru controlul și modificare comportamentului fluid în vecinătatea suprafețelor solide, inclusiv prin inducerea fenomenului de hidrofobicitate dinamică (alunecare aparentă).



**Figure 9.** Influența distanței dintre plăci și a micro-structurilor plăcii inferioare în măsurarea viscozității fluidului newtonian și a soluției de polimer (geometrie placă-placă, viteza de deformație aparentă  $\dot{\gamma} = 50 \ s^{-1}$ ).



**Fig. 10.** Viscozitatea relativă  $\eta_m/\eta_0$  pentru  $h \le 100 \ \mu\text{m}$ : comparație între model (soluții analitice și numerice) și experiment (valoarea  $\eta_0$  corespunde la distanța  $h = 200 \ \mu\text{m}$  unde  $\eta_m/\eta_0 = 1$ ).

#### Studii experimentale propuse pentru etapa viitoare

Analiza influenței suprafețelor structurate asupra curgerii fluidelor simple și complexe va continua în etapa a 3-a a proiectului prin efectuarea a 4 studii experimentale; configurațiile folosite vor fi următoarele:

- 1. Microgeometri cu pereți structurați (mișcări Poiseuille controlate și investigate cu sistemul micro-PIV);
- 2. Mișcări rotaționale între plăci și cilindri cu suprafețe structurate (reometrie);
- 3. Impactul jetului pe suprafețe structurate și studiul fenomenului de vortex ring, v. Fig. 11.
- 4. Curgerea în vecinătatea suprafețelor structurate imersate, v. Fig. 12.



**Fig. 11** Impactul unui micro-jet pe o suprafață netedă și formarea structurilor *vortex ring.* Se preconizează extinderea studiilor pe suprafețe micro-structurate.



**Fig. 12** Curgerea cu suprafață liberă în jurul corpurilor imersate: comparație între spectrele curgerii corespunzătoare suprafețelor netede și structurate. Investigațiile se vor focaliza pe zona din vecinătatea punctului de desprindere.

De asemenea, studiile experimentale se vor concentra și asupra materialelor folosite pentru acoperirea suprafețelor micro-structurate. Se dorește folosirea unor materiale ceramice (PDC), în vederea extinderii aplicațiilor la temperaturi înalte și presiuni extreme<sup>6</sup>.

#### Concluzii

Obiectivul central al acestei etape, validarea capacității suprafețelor micro-structurate de a induce fenomenul de hidrofobicitate dinamică, a fost îndeplinit. Confirmarea calității activității depuse este publicare unui articol de referință în JNNFM<sup>3</sup>.

În afara studiilor experimentale menționate în paragraful anterior și continuarea dezvoltării aplicațiilor în reometrie, în etapa următoare un obiectiv central este **formularea relației constitutive pentru modelarea comportamentului reologic al fluidelor simple și complexe în vecinătatea pereților micro-structurați.** 

În atingerea acestui obiectiv ambițios se preconizează trei direcții de studiu:

- a) Cercetare bibliografică extinsă și realizarea unor contacte directe cu cercetători externi a căror realizări în domeniu sunt recunoscute pe plan mondial;
- b) Analiza și sintetizarea rezultatelor experimentale obținute pentru diferite configurații ale curgerii;
- c) Formularea modelului teoretic, compatibil cu un mediu de lucru (cod) numeric existent: *Mathematica*, respectiv Fluent.

27. Noiembrie. 2014

Director de proiect,

Smelin Jolan

Prof. Corneliu Bălan

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> Ionescu E., Balan C., Kleebe H-J., Mueller M., Guillon O., Schliephake D., Heilmaier M., Riedel R., *High-temperature creep behavior of SiOC glass-ceramics: Influence of network carbon versus segregated carbon*, J. Am. Ceram. Soc., 1–8 (2014), DOI: 10.1111/jace.13206