2 Conceitos fundamentais

Alguns conceitos são necessários para entender toda a parte básica sobre emulsões na área de petróleo e a influência dos fenômenos físicos no comportamento delas. Assim, também é importante conhecer os diferentes conceitos e mecanismos até agora propostos na literatura na área de escoamento multifásico micro-fluídico, em especial os que desenvolvem os processos de formação de emulsões por quebra de gota em um fluxo cruzado em junções micro-fluídicas T, considerando que poderia descrever bem o fenômeno de quebra de gota que acontece na união de dois poros em um reservatório de petróleo.

2.1. Emulsões

Uma emulsão é uma dispersão de gotas de um líquido (fase dispersa) em um outro líquido (fase contínua). As emulsões produzidas nos campos de petróleo podem ser classificadas em três grupos, como mostra a figura (2.1) [7]:

- Emulsões de água em óleo (a/o), são aquelas formadas por gotas de água em uma fase contínua de óleo. Na indústria do petróleo, emulsões a/o são as mais comuns e são algumas vezes referidas como emulsões inversas.
- Emulsões de óleo em água (o/a), são aquelas formadas por gotas de óleo em uma fase contínua de água. Estas são referidas como emulsões reversas [7].
- Emulsões múltiplas ou complexas, consistem em pequenas gotas suspensas em gotas maiores, que por sua vez estão suspensas em uma fase contínua. Uma emulsão água-em-óleo-em-água (a/o/a), por exemplo, consiste em gotas de água suspensas em gotas maiores de óleo que por sua vez estão suspensas em uma fase contínua de água [7].



Figura 2.1: Classificação das emulsões: a) Emulsão água em óleo. b) Emulsão óleo em água. c) Emulsão múltipla a/o/a [30].

Em geral, em uma mistura de dois líquidos imiscíveis, se a fração de volume de uma fase é muito pequena comparada com a outra, então a fase que tem a menor fração vai se converter na fase dispersa da emulsão, sendo a outra, a fase contínua. Quando a razão das frações volumétricas é aproximadamente 1, ou seja, quando as quantidades volumétricas são quase da mesma ordem, outros fatores determinam o tipo de emulsão formada [7].

Dependendo do tamanho (diâmetro) de gotas da fase dispersa, uma emulsão pode ser classificada como macro-emulsão (gotas da ordem dos micrômetros) ou micro-emulsão (gotas entre 0.01 - 0.001 μ m) [31]. Portanto, as emulsões presentes nos campos de produção de petróleo são geralmente macro- emulsões, considerando que os tamanhos excedem 0.1 μ m e podem ser maiores do que 50 μ m [7].

Naturalmente uma emulsão não é estável. As gotículas da fase dispersa tendem se juntar (coalescer) convertendo a emulsão em uma mistura de duas fases contínuas. Esta característica se deve ao fato que o sistema tende a reduzir a sua área interfacial e, portanto, a sua energia interfacial [7]. Uma emulsão é geralmente estabilizada por um agente que evita a coalescência da fase dispersa.

2.2. Estabilidade das emulsões

As emulsões são geralmente estabilizadas por emulsificantes (agentes ativos de superfície, ou surfactantes) que se concentram na interface óleo-água formando filmes interfaciais. Isso permite reduzir a tensão interfacial e promover a dispersão e emulsificação das gotas.

No óleo cru existem emulsificantes naturais como asfaltenos, resinas, ácidos naftênicos e bases. Acredita-se que estes componentes são os principais constituintes dos filmes interfaciais que se formam ao redor das gotas nas emulsões encontradas nos reservatórios de petróleo.

Outros surfactantes que podem estar presentes provém dos produtos químicos injetados na formação ou poço. Estes produtos são utilizados nos fluidos de perfuração, na estimulação química, nos inibidores de corrosão e depósitos (scale) e no controle de asfaltenos e ceras. Sólidos pequenos também podem atuar como estabilizadores mecânicos. Estas partículas, que são muito menores do que as gotas de emulsão, se acomodam na interface óleo-água. A efetividade destes sólidos na estabilidade das emulsões depende de fatores como tamanho, interação, e molhabilidade. Na produção de óleo estas partículas podem ser de argila, areia, asfaltenos e ceras, produtos da corrosão, depósitos minerais e lama de perfuração [7].

2.3. Surfactante

É um composto caracterizado pela capacidade de alterar as propriedades interfaciais ou superficiais de um líquido. As moléculas de um surfactante têm duas partes diferençadas. Uma parte é hidrofílica (cabeça) enquanto a outra é hidrofóbica (cauda). Esta propriedade faz com que elas se juntem na interface de dois líquidos imiscíveis, ou na superfície quando o sistema é líquido-gás. Surfactantes favorecem a estabilidade da dispersão, evitando a coalescência da fase dispersa [31]. A figura (2.2) mostra como as moléculas de surfactante se distribuem na interfase de uma gota de óleo em água.



Figura 2.2: Comportamento das moléculas de surfactante na interface de uma gota de óleo em água. Adaptado de Miranda (2010) [30].

Chama-se concentração micelar crítica (CMC), a concentração mínima de surfactante na qual se inicia a formação de micelas (aglomeração de moléculas de surfactantes) que permite atingir a mínima tensão interfacial (ou superficial). Para que isso aconteça é necessário que a interface ou superfície esteja completamente saturada de moléculas de surfactante [31]. O uso de quantidades maiores de surfactante praticamente não altera a tensão mínima atingida, mas garante a formação de micelas e a estabilidade da emulsão como mostrado na figura (2.3).



Figura 2.3: Comportamento do surfactante no sistema óleo-água (emulsão o/a) para concentrações diferentes de surfactante. a) Sem surfactante as gotas da fase dispersa coalescem. b) Abaixo da CMC existe pouca coalescência de gotas. c) Na CMC existe estabilidade da emulsão. d) Acima da CMC existe estabilidade da emulsão e formação de micelas. Adaptado de Silva *et. al.* (2003) [32].

2.4. Fenômenos associados à interface de dois fluidos

2.4.1. Capilaridade:

O fenômeno de capilaridade ocorre na interface entre dois fluidos imiscíveis em uma escala na ordem de micrômetros. Assim, este fenômeno é importante quando se estuda o escoamento bifásico no interior dos meios porosos que constituem os reservatórios de petróleo. Os fenômenos capilares são resultado da atração diferente entre as moléculas dos dois fluidos que formam a interface. Uma molécula situada no interior de um líquido será atraída igualmente em todas as direções pelas moléculas que a rodeiam, como mostrado na figura (2.4). Porém, isso não acontece com as moléculas situadas na superfície do líquido que não serão atraídas igualmente por estarem rodeadas de moléculas de diferentes tipos.



Figura 2.4: Película superficial criada pelas forças moleculares [4].

Uma gota de líquido isolada apresenta sempre uma superfície esférica devido a este desequilíbrio de forças moleculares, como consequência de tentar manter uma superfície mínima. Assim a superfície pode se comparar com uma membrana elástica que oferece resistência à separação das moléculas [4].

2.4.2. Tensão interfacial, superficial e suas variantes

A energia necessária para se formar uma determinada superfície chama-se energia total livre de superfície (E). Já a energia de superfície por unidade de superfície é chamada de energia livre de superfície unitária (E_s). A força que impede o rompimento da superfície, por unidade de comprimento, chama-se tensão interfacial ou superfícial, sendo representada por σ . Semelhantemente, a força que tende a puxar uma superfície para o centro chama-se força capilar (F_c) e esta, dividida pela área da superfície, é denominada pressão capilar (P_c). Finalmente, tensão interfacial e superficial são propriedades dependentes da temperatura e da concentração de fases. A diferença na nomenclatura, por convenção, é que a primeira se refere ao contato entre dois líquidos imiscíveis e a segunda ao contato entre um líquido e um gás [4].

Antonoff (1907) apresentou uma relação entre a tensão interfacial e a tensão superficial. Esta relação postula que em uma mistura de dois líquidos imiscíveis em equilíbrio, a tensão interfacial é aproximadamente igual à diferença das tensões superficiais de cada fase, como é apresentada na equação (2.1):

$$\sigma_i = \sigma_{s1} - \sigma_{s2} \tag{2.1}$$

Onde, $\sigma_{s1} e \sigma_{s2}$ são as tensões superficiais das fases 1 e 2, respectivamente, e σ_i a tensão interfacial entre fases. [33].

2.4.3. Equação Young-Laplace:

A pressão capilar, isto é a diferença de pressão entre duas fases imiscíveis que formam uma interface é dada pela equação de Young-Laplace. Ela é uma função da tensão interfacial entre as fases e a curvatura da interface:

$$Pc = \sigma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}\right) \tag{2.2}$$

Onde R_1 e R_2 são denominados raios principais de curvatura da superfície, como mostra a figura (2.5). Note que no caso de uma superfície esférica a pressão capilar é dada por: $P_c=2\sigma/R$, onde $R=R_1=R_2$. [4]



Figura 2.5: Superfície curva que mostra os raios principais que a definem.

2.4.4. A molhabilidade e o ângulo de contato:

A molhabilidade é uma propriedade que define a afinidade entre um líquido e um sólido, e o ângulo de contato é a tradução quantitativa desse conceito. A figura (2.6) indica uma situação típica na qual uma gota de um fluido está em contato com um sólido, todo isso banhado por outro fluido:



Figura 2.6: Molhabilidade e ângulo de contato [5].

Na equação (2.3), a variável σ_{ij} indica a tensão interfacial entre as fases *i* e *j*. Na linha de contato trifásico, existe um equilíbrio de forças na direção horizontal, expresso como:

$$\sigma_{13} = \sigma_{23} + \sigma_{12} \cos\theta \tag{2.3}$$

Onde θ é o ângulo de contato do fluido 2 com o sólido 3. Se este ângulo varia entre 0° < θ < 90°, a gota se estende sobre o sólido e diz-se que o fluido 2 molha o sólido 3. No caso, se este ângulo varia entre 90° < θ < 180°, então é o fluido 1 que molha o sólido 3.

A figura (2.7) mostra os dois casos expostos. Aqui se tem água como fluido 1, óleo como fluido 2, e os sólidos 3 e 4 com diferente natureza para cada caso. No caso (a), a água não molha o sólido 3 e se diz que o sólido tem natureza hidrofóbica. No caso (b), por outro lado, a água molha o sólido 4 e se diz que o sólido tem natureza hidrofílica.



Figura 2.7: Diferentes casos de molhabilidade. a) O fluido 2 "molha" preferencialmente o sólido 3. b) O fluido 1 "molha" preferencialmente o sólido 4. [5].

Dependendo da proporção que o fluido 1 ou 2 molhe o sólido 3, os fenômenos interfaciais das interfaces 1-3 ou 2-3, poderiam ser favorecidos ou não. Isso porque a situação depende da relação vetorial entre as tensões, a qual pode ser alterada pela presença de um surfactante, que pode mudar uma ou várias destas tensões. Assim, é obvio que o uso de surfactante, é a forma mais prática para produzir uma dada situação ou mudá-la [5].

2.4.5. Fenômenos capilares em meios porosos

Percebe-se claramente que para saturações de água muito baixa, $S_w < S_{wc}$, a água permanece imóvel no meio poroso, sua permeabilidade relativa k_{rw} é nula. A saturação crítica acima da qual inicia-se o fluxo de água é chamada de saturação de água conata S_{wc} . Apartir deste valor, a medida que a saturação de água cresce, mais parte do espaço poroso é ocupado por água, tornando o fluxo da fase aquosa mais fácil. Isto é representado no gráfico da figura (2.8) pelo aumento da permeabilidade relativa da água e a queda da permeabilidade relativa do óleo k_{ro} . A saturação de óleo abaixo da qual a fase oléica não forma um filme contínuo e consequentemente a permeabilidade relativa torna-se nula é chamada de saturação residual de óleo S_{or} . [4].



Figura 2.8: Curvas de permeabilidade relativa à água e ao óleo em função da saturação de água S_w[4].

A saturação de óleo residual não é zero (ou seja, não está sobre o valor que corresponde a 100% de água) por que os fenômenos capilares fazem com que as gotas de óleo fiquem presas no meio poroso de forma descontínua quando a saturação atinge este valor crítico.

2.4.6. O Número de capilaridade: Forças Viscosas contra Forças Capilares

A figura (2.9) mostra uma situação que poderia descrever o que acontece em um reservatório que é molhado pela água. Neste caso existem dois poros em paralelo, um dos quais contêm uma gota de óleo presa. No caso de deslocamento em um meio poroso existem razões que podem produzir uma diferença de pressão na interface da gota 1-2 e 3-4. Se a gota se encontra em um poro de seção transversal de área variável, a pressão capilar indica que a diferença de pressão não será a mesma através das interfaces.



Figura 2.9: Configuração de uma gota de óleo presa em um poro na presença de um gradiente de pressão produzido pelo fluxo de água no meio poroso. Adaptado de Baviere e Canselier (1997) [5].

Na figura (2.9) o raio da interface 1-2 é maior do que o raio da interface 3-4, assim a pressão capilar indica que P_2 - P_1 = $2\sigma/R_{12}$ é inferior que P_3 - P_4 = $2\sigma/R_{34}$.

Se a pressão na água fora da gota fosse constante, então $P_1=P_4$ e se deduz que $P_2 < P_3$, assim a gota tende a se deslocar para a esquerda, ou seja, a gota tende a sair do poro.

Se existir um gradiente de velocidade da água da esquerda para direita, tal que se produza uma perda de carga $\Delta P = P_1 - P_4$, pode se estabelecer através da equação (2.4):

$$P_2 - P_3 = \Delta P - 2\sigma/R_{34} + 2\sigma/R_{12} \tag{2.4}$$

Assim para que exista movimento de esquerda para a direita, P_2 tem que ser maior do que P_3 . Nesse caso, a condição da equação (2.5) deve ser satisfeita. Existe uma diferença de pressão mínima, abaixo da qual a gota de óleo não se movimenta. Esta pressão é função da tensão interfacial e da geometria do poro.

$$\Delta P/2\sigma > (1/R_{34}) - (1/R_{12}) \tag{2.5}$$

As leis de Darcy e Young-Laplace indicam que ΔP é diretamente proporcional à viscosidade e velocidade do fluido e, inversamente proporcional ao raio do poro e a permeabilidade do meio. Desse modo, a condição de mobilização é favorecida por um incremento na velocidade de injeção de água (*V*) e um incremento da sua viscosidade (μ). Por outro lado, a condição de mobilização também é favorecida por uma diminuição da tensão interfacial (σ).

A relação entre as forças viscosas de drenagem e as forças capilares é expressa em forma adimensional pelo chamado número de capilaridade, cuja expressão varia de acordo com o problema específico e pode ser definida como: $Ca=V\mu/\sigma$, $Ca=\Delta P/\sigma$ ou $V\mu/\sigma cos\theta$.

Todas estas expressões são equivalentes pelo significado fenomenológico e não importa qual é escolhido, embora seja a primeira relação a mais utilizada.

Os dados da literatura mostram que o porcentual de recuperação de óleo em um meio poroso, considerando a saturação residual de óleo, é essencialmente nula quando o número de capilaridade é inferior a 10^{-6} e essencialmente 100% quando é superior a 10^{-3} . Assim, se pudéssemos aumentar o número de capilaridade em três ou quatro ordens de magnitude, com certeza poderíamos atingir também uma recuperação de quase 100% de óleo na zona varrida [5].

Os métodos de recuperação avançada geralmente têm como objetivo aumentar o número de capilaridade. Nesse caso, as alternativas seriam aumentar a velocidade de fluxo, aumentar a viscosidade ou reduzir a tensão interfacial. A primeira possibilidade está limitada pelo custo e pela pressão de fratura da rocha reservatório, além de que o aumento da velocidade tende a favorecer o aparecimento do fenômeno de digitação viscosa representado pela produção de caminhos preferenciais ou *fingers*. Ao aumentar a viscosidade mediante a utilização de polímeros hidrossolúveis como poliacrilamida ou gomo xantana (polissacarídeo) se pode ganhar um fator, embora a maior viscosidade da fase aquosa torne maior o gradiente de pressão para obter a mesma velocidade do fluido, e este fator também é limitado pela barreira da pressão de fratura [4, 5].

Deste modo o aumento do número de capilaridade por aumento da velocidade e viscosidade da fase aquosa está limitado a uma ordem de magnitude, e na maioria de casos isso é insuficiente. Nesse sentido é imprescindível atingir uma redução considerável da tensão interfacial entre água e óleo como em três

ordens de magnitude, e isso é feito nos chamados métodos de recuperação avançada por injeção de surfactantes ou de micro-emulsões.

2.4.7. Fluxo em micro canais

A mecânica de fluidos em micro-canais é caracterizada pelo baixo número de Reynolds, definido na equação (2.6), que relaciona forças inerciais e forças viscosas:

$$\operatorname{Re} = \frac{\rho_c u_c D}{\mu_c} \tag{2.6}$$

Onde ρ_c é a densidade da fase contínua, u_c velocidade média da fase contínua, D comprimento característico do meio e μ_c viscosidade da fase contínua. Assim, um baixo número de Reynolds (Re<<1) indica um domínio das forças viscosas sobre as forças inerciais fazendo estas últimas desprezíveis. Nesta escala, as forças capilares já começam a ter uma forte influência sobre o fluxo em microcanais, e em consequência os dois grupos de forças, viscosas e capilares, influenciam no mecanismo de fluxo e formação de gota [29]. Assim, para essas condições o número de capilaridade (Ca_c) definido na equação (2.7) é comumente utilizado na literatura da área micro-fluídica, determinando em que momento um grupo é mais representativo do que outro.

$$Ca_c = \frac{u_c \mu_c}{\sigma} \tag{2.7}$$

Onde u_c é velocidade média da fase contínua, μ_c viscosidade da fase contínua e σ tensão interfacial entre as fases dispersa e contínua.

2.5. Formação de emulsões

A formação de emulsões, também conhecido como emulsificação, é um importante processo utilizado em várias indústrias como alimentos, cosméticos, farmacêuticos e químicos. As emulsões monodispersas têm grande significância para os campos industriais e científicos devido a sua boa estabilidade e o controle da suas propriedades. Emulsões são produzidas comumente usando-se instrumentos convencionais como máquinas de dispersão, moinhos coloidais e homogeneizadores de alta pressão, neste caso as emulsões resultantes são consideravelmente polidispersas [35].

Várias técnicas para produzir emulsões monodispersas têm sido desenvolvidas na ultima década. Mason e Bibette [37] reportaram que a quebra por cisalhamento de gotas viscosas polidispersas em fluidos complexos viscoelásticos poderia produzir emulsões monodispersas. Nakashima et al. [38] descreveu a emulsificação de membrana, que pode produzir emulsões monodispersas ao se forçar uma fase dispersa em uma fase contínua através de uma membrana micro-porosa. Kawakatsu et. al. [39] propuseram a emulsificação de micro-canal (MC) para o mesmo objetivo. Umbanhowar et. al. [13] desenvolveram uma técnica para preparar emulsões monodispersas forçando a fase dispersa dentro de um co-fluxo de fase contínua através de um capilar. Anna et. al. [23] utilizaram um dispositivo mediante o qual um fluxo laminar de fase dispersa e contínua é focado dentro de um orifício estreito conectado a uma abertura grande, obtendo também emulsões monodispersas. Por outro lado, vários grupos de pesquisa têm mostrado que gotas monodispersas são formadas por forças cisalhantes devido a um fluxo de fase contínua em uma junção T de canais micro-fluídicos [36].

Como já foi indicado antes, existem muitos mecanismos de formação de emulsões, mas um deles relacionado com a formação de gotas por fluxo cruzado em junções micro-fluídicas T, é um dos mais importantes para o interesse desta dissertação, visto que pode descrever o que acontece na união de dois poros em um reservatório de petróleo. Assim, apresenta-se a seguir uma visão geral da pesquisa recente nesta área, que é base para o desenvolvimento deste trabalho.

2.5.1. Recentes estudos em micro-hidrodinâmica

O escoamento de gotas em sistemas micro-fluídicos é uma área recente, que foi bastante desenvolvida pelo avanço na tecnologia da fabricação de sistemas micro-fluídicos. Muitos trabalhos já foram desenvolvidos com aplicações nas áreas de tecnologia microquímica, biotecnologia, sistemas micro-eletromecânicos (MEMS) e sistemas de análises micro-total (μTAS), entre outros [41]. A figura (2.10) apresenta uma classificação geral da dinâmica de gotas micro-fluídicas [42]:



Figura 2.10: Classificação da dinâmica de gotas micro-fluídicas segundo a revisão dos recentes trabalhos desenvolvidos [42].

Baroud *et. al.* (2010) [42] classificaram os estudos da dinâmica das gotas micro-fluídicas seguindo a aplicação. Assim, considerou três campos principais: formação, transporte e coalescência de gotas, levando em conta todos os fenômenos envolvidos em cada aplicação, como a geometria nas quais são formadas, a velocidade das gotas, as relações pressão-vazão, o campo de fluxo induzido pela presença de gotas, e os diferentes tipos de formas de eliminar a interface para favorecer a coalescência de gotas [42].

Por sua vez, cada campo tem uma subclassificação que é mostrada a seguir:

2.5.2. Formação de gotas:

Existem três formas diferentes de formação de gotas, baseados em diferentes mecanismos físicos, descritos a seguir:

2.5.2.1. Formação por fluxo cruzado (junção T e Y)

Esta forma é mostrada na figura (2.11). Aqui a fase contínua é introduzida em um canal horizontal e a fase dispersa flui através de um canal perpendicular (ou inclinado no caso da junção Y), assim as gotas são formadas pelas forças cortantes (ou pressão) que produz o fluxo cruzado na junção [27, 43, 44]. Neste caso, a formação de gotas é controlada pela razão das vazões dos fluidos injetados e pelo número de capilaridade [27, 29, 34, 43, 44, 46, 47].



Figura 2.11: Formação de gotas por fluxo cruzado. a) Junção T [15]. b) Junção Y [44].

2.5.2.2. Formação por correntes de co-fluxo

A figura (2.12) mostra um mecanismo de formação de gotas pela qual a fase dispersa é introduzida através de um canal (ou um capilar), dentro de um fluxo de fase contínua, gerando um co-fluxo de duas fases antes de terminar na formação de gotas monodispersas [13, 48]. Este mecanismo está controlado principalmente pela inércia dos fluidos injetados, mas não pela capilaridade [26, 40, 49, 50].



Figura 2.12: Formação de gotas por correntes de co-fluxo [52].

2.5.2.3. Formação por fluxo focado

Como é mostrado na figura (2.13), geralmente a fase contínua flui através de dois canais externos ao canal central que leva a fase dispersa. As duas fases são forçadas dentro de um canal ou orifício que desemboca em um espaço maior formando gotas monodispersas [23, 48]. Semelhantemente ao que ocorre na formação por co-fluxo, aqui também existe um controle em função da inércia dos fluidos injetados e não da capilaridade [25, 40, 49, 50].



Figura 2.13: Formação de gotas por fluxo focado [23].

2.5.3. Transporte de gotas:

Existem duas formas diferenciadas:

2.5.3.1. Transporte de gotas de diâmetro menor do que a largura do canal

Quando as gotas são menores do que o diâmetro do canal ou capilar, elas mantêm um formato quase esférico, como é mostrado na figura (2.14).



Figura 2.14: Gotas menores que a largura do canal imersas em um fluido transportador [42].

2.5.3.2. Transporte de gotas que ocupam maior espaço do que a largura do canal

No caso das gotas serem maiores do que o diâmetro do capilar, elas se deformam e um filme fino da fase contínua é formado entre a gota e a parede do canal, como é mostrado na figura (2.15).



Figura 2.15: Gotas maiores do que a largura do canal. O transporte é uma sucessão ordenada de gotas (fase dispersa) e "frações" de fase contínua [42].

2.5.4. Coalescência de gotas:

A maioria dos trabalhos publicados focam em dois mecanismos, como descrito a seguir.

2.5.4.1. Coalescência passiva

Quando a coalescência é obtida pelo uso de algum método físico, como mostra a figura (2.16).



Figura 2.16: Coalescência passiva de gotas. a) Por geometria que permite o aprisionamento e fusão de gotas [51]. b) Por desestabilização através de uma câmara de descompressão [53].

2.5.4.2. Coalescência ativa

Quando é obtida pelo uso de algum método elétrico, magnético, o algum outro método externo, como mostra a figura (2.17).



Figura 2.17: Coalescência ativa de gotas. a) e b) Por eletro-coalescência, pares de gotas coalescem entre os dois eletrodos [54]. c) Por aquecimento localizado através de um laser [42].

2.6. Formação por fluxo cruzado em uma junção micro-fluídica T

Este trabalho trata da formação de gotas baseado no mecanismo de quebra por fluxo cruzado em uma junção micro-fluídica T, como um tipo particular de modelagem de união de dois poros.

Na ultima década, alguns autores têm classificado os mecanismos de formação de gotas neste sistema, em três tipos principais [15, 29, 41, 48, 56]: (i) mecanismo de quebra confinado (*squeezing*), (ii) mecanismo de quebra não confinado (*dripping*), (iii) mecanismo de quebra por jato (*jetting*).

Segundo a literatura, todos estes trabalhos foram desenvolvidos para junções micro-fluídicas T com seções retangulares.

É importante levar em conta que estes mecanismos também são considerados na literatura para classificar a formação de gota por fluxo focado (*squeezing, dripping e jetting*) [23, 55, 57, 58] e cofluxo (*dripping e jetting*) [19, 21, 22, 59], considerando as características similares que foram observadas em comparação ao enfoque por fluxo cruzado, porém essa análise escapa aos objetivos desta dissertação.

Além disso, outros autores têm pesquisado mecanismos intermediários, ou seja, mecanismos que ocorrem na faixa de transição de um mecanismo para outro. A literatura apresenta trabalhos para a transição *squeezing-dripping* [29, 41, 46, 47], mas não para a transição *dripping-jetting*.

Neste capítulo será descrito, também, como acontece o mecanismo de transição *squeezing-dripping*, conhecido como mecanismo de quebra parcialmente confinado [41].

2.6.1. Mecanismo de quebra confinado:

A figura (2.18) apresenta o processo de formação de gota pelo mecanismo de quebra confinado:



Figura 2.18: Sequência do processo de formação de gota pelo mecanismo de quebra confinado. Fase dispersa: nitrogênio, fase contínua: água, w=120µm, p=120µm, h=40µm [41].

Este mecanismo começa quando um volume de fase dispersa entra e obstrui o canal principal e é influenciado pela forma e tamanho do canal. Aqui, a fase contínua só pode passar através do filme delgado entre a fase dispersa e a parede do canal. A obstrução incrementa a pressão na fase contínua a montante do bloqueio, e leva a interface do fluxo bifásico em direção à jusante. Finalmente a quebra acontece e gera gotas ou bolhas, dependendo se a fase dispersa é um líquido ou um gás, respectivamente [27]. Este mecanismo é conhecido como regime de estrangulamento da gota ou *squeezing* [29, 46] e ocorre a baixo número de capilaridade [29, 27]. O tamanho das gotas ou bolhas formadas é controlado pela razão entre as vazões de fluxo da fase dispersa e contínua [27, 34] e normalmente é muito maior que a largura do canal.

2.6.2. Mecanismo de quebra não confinado:

A figura (2.19) apresenta o processo de formação de gota pelo mecanismo de quebra não confinado:



Figura 2.19: Sequência do processo de formação de gota pelo mecanismo de quebra não confinado. Fase dispersa: água, fase contínua: óleo, w=275µm, p=27.5µm, h=100µm [60].

Neste caso, o volume de líquido da fase dispersa não obstrui o canal durante o processo de formação de gotas ou bolhas. O tamanho é controlado principalmente pela tensão tangencial e é usualmente menor do que a largura do canal. Este mecanismo de quebra é chamado regime de gotejamento ou *dripping* [29, 46]. Neste caso o canal da fase contínua é usualmente maior que o canal da fase dispersa [60]. Alguns autores investigaram os efeitos da viscosidade da fase contínua e a tensão interfacial entre as duas fases sobre o tamanho das gotas ou bolhas formadas [60, 45]. Husny e Cooper-White, em 2006 [60], propuseram que a quebra da fase dispersa ocorre em um equilíbrio entre as forças tangenciais e a força de tensão superficial exercidas na interface entre as fases. Eles mostraram que o tamanho depende do número de capilaridade Ca_c , mas não sobre as razões das vazões de fluxo e das viscosidades entre as duas fases.

2.6.3. Mecanismo de quebra tipo jato:

Neste regime a formação de gotas se produz a jusante da junção com um filamento de fase dispersa "tipo jato" perto da parede do canal e paralelo à direção de fluxo da fase contínua. As gotas incipientes crescem na ponta do filamento e se separam quando se produz a quebra do pescoço que as mantinha unidas ao volume da fase dispersa [44], assim como é mostrado na figura (2.20):



Figura 2.20: Mecanismo de formação de gotas tipo "jetting" em junções micro-fluídicas T de seção retangular. a) Experimental [15]. b) Experimental [61]. c) Simulação [29].

Este regime foi observado só em altas razões de fluxo, a baixa tensão interfacial, ou também em altos valores de número de capilaridade, similar aos casos não confinados (fluxo focado e co-fluxo). Alguns autores estabelecem que o fluido disperso se estende a jusante da junção T, fazendo um fluxo laminar lado a lado com a fase contínua sobre um comprimento que é várias vezes maior que sua largura [29]. De Menech *et al.*, em 2008, notaram que embora este mecanismo *jetting* seja associado à formação de longos filamentos antes da formação de gota (usualmente associado a efeitos inerciais da fase interna), são os efeitos cisalhantes da fase externa os que levam ao *jetting* a baixo número de Reynolds.

2.6.4. Mecanismo de quebra parcialmente confinado:

A figura (2.21) apresenta o processo de formação de gota pelo mecanismo de quebra parcialmente confinado:



Figura 2.21: Sequência do processo de formação de gota pelo mecanismo de quebra parcialmente confinado. Fase dispersa: óleo, fase contínua: água, w=300µm, h=200µm, Ø=50µm [45].

Neste caso, o volume da fase dispersa é parcialmente confinada pelo canal, e a quebra é controlada simultaneamente pela pressão montante e pela força tangencial. O regime de quebra parcialmente confinado está entre o *squeezing* e o *dripping* e é chamado regime de transição [29, 46, 47]. O tamanho das gotas e bolhas é controlado pela razão das vazões de fluxo e pelo número de capilaridade [46, 47]. Usualmente não é fácil modelar a formação de gotas ou bolhas neste regime devido aos efeitos causados pelo acoplamento de vários parâmetros.

2.6.5. Modelos empíricos propostos na literatura:

Uma das maneiras para se obter relações empíricas entre o tratamento das gotas formadas e as variáveis do escoamento é analisar as forças envolvidas nos processos de formação de gotas [16, 43, 48]. A dinâmica de formação de gotas é principalmente governada por algumas variáveis, incluindo geometria do canal e propriedades (tipo de canal, dimensões e hidrofobicidade), propriedades dos fluidos (densidade, viscosidade, tensão interfacial e ângulo de contato), e parâmetros de operação (pressão, vazões de fluxo, temperatura e campo elétrico, etc).

Três regimes de fluxo foram identificados para formação de gotas em junções micro-fluídicas T: *squeezing*, *dripping* [27, 29, 46], e *jetting* [21, 29]. Dois são os modelos dinâmicos principais de quebra de gota que correspondem a estes regimes de fluxo. O primeiro modelo de quebra para o regime *squeezing* for proposto por Garstecki *et. al.* [27] principalmente para quebra por bloqueio do canal. Um segundo modelo que descreve a quebra por forças tangenciais proposto

por Thorsen *et. al.* [43]. Neste último, a quebra produz gotas de formato pequeno, de dimensões menores do que a largura do canal.

Segundo Garstecki *et. al.* [27], o regime *squeezing* é caracterizado por um baixo número de capilaridade. Aqui os esforços cisalhantes são muito menores do que as forças interfaciais, assim a quebra da gota é dominada pelo incremento da pressão a montante da gota em formação pelo bloqueio do canal.

Neste mecanismo, primeiramente a fase dispersa, fluindo a uma vazão Q_d , proveniente do canal secundário, penetra e bloqueia o canal principal. Nesse momento o comprimento da gota é aproximadamente igual à largura w da seção do canal, que possui uma altura constante h. Assim, o incremento da pressão a montante da interface pela injeção da vazão de fase contínua Q_c inicia o estrangulamento do pescoço da gota em formação (de comprimento característico d). A espessura do pescoço decresce a uma taxa que é aproximadamente igual a velocidade média da fase contínua: $u_{squeeze} \approx Q_c / hw$. Durante esse processo a gota cresce a uma taxa aproximadamente igual a velocidade média da fase dispersa: comprimento da é $u_{crescimento} \approx Q_d / hw.$ Ο final então: gota $L \approx w + (d/u_{squeeze})u_{crescimento} = w + d(Q_d/Q_c),$ forma adimensional: ou na $L/w \approx l + \alpha(Q_d/Q_c) \operatorname{com} \alpha = (d/w)$. Garstecki *et. al.* [27] considerou $\alpha = l$, entre outras razões, porque parte da fase contínua vai ao redor da gota e não contribui com o estrangulamento e porque a velocidade com que o pescoço quebra não precisa ser constante, assim ele propôs a equação (2.8):

$$\frac{L}{w} = 1 + \frac{Q_d}{Q_c} \tag{2.8}$$

Outras relações semelhantes também foram propostas. Tice *et. al.* [14] e Xu *et. al.* [46] estabeleceram as equações (2.9) e (2.10), respectivamente:

$$\frac{L}{w} = 1.9 + 1.46 \frac{Q_d}{Q_c}$$
(2.9)

$$\frac{L}{w} = 1.38 + 2.52 \frac{Q_d}{Q_c} \tag{2.10}$$

Xu *et. al.* [46], estabeleceu que para este regime, o tamanho de gota é uma função da razão das vazões dos dois líquidos injetados, segundo a equação (2.11):

$$\frac{L}{w} = \varepsilon + \delta \frac{Q_d}{Q_c} \tag{2.11}$$

Onde *L* é o comprimento da gota, *w* é a largura do canal, Q_d e Q_c são as vazões de fluxo da fase dispersa e contínua respectivamente, e os parâmetros ε e δ dependem da geometria da junção.

No regime *dripping*, o número de capilaridade Ca_c aumenta porque os esforços cisalhantes da fase contínua começam a ter um papel importante no processo de formação de gotas e o mecanismo de formação muda para o tipo dominado pelos esforços tangenciais [43]. As gotas são formadas sem confinamento na junção T [60, 63] e o diâmetro da gota d_d é descrito por um balanço entre as forças interfaciais e as forças de corte, segundo a equação (2.12) [29, 43]:

$$d_d \propto \frac{1}{Ca_c} \tag{2.12}$$

O regime *jetting* reportado por alguns autores como mais um mecanismo de formação de gotas em junções micro-fluídicas T [15, 29, 61], ainda não foi descrito na literatura por modelos escalares, mas Mbanjwa *et. al.* (2010) [62] reportaram algumas instabilidades capilares observadas em uma junção micro-fluídica T que são análogas à clássica instabilidade Plateau-Rayleigh, a baixo número de Reynolds [62].

Muitos trabalhos já foram feitos para descrever o mecanismo chamado de transição *squeezing-dripping*, mas assim não é fácil modelar devido aos efeitos combinados de vários parâmetros [29, 41, 47].

Não foram encontrados na literatura trabalhos desenvolvidos em junções micro-fluídicas T de seção circular ou oval, e nesse sentido, o presente trabalho pode servir de ponto de partida para a pesquisa com estas geometrias.