

# 1 Introdução

## 1.1 Motivação da investigação

Os problemas de escoamento com superfície livre há muito são investigados, tanto pela sua importância no campo científico-tecnológico quanto pela sua presença na natureza em processos biológicos. Por superfície livre entende-se que a superfície de um determinado fluido escoando está em contato com um outro fluido (um gás ou um líquido). Em muitos desses problemas o escoamento envolve um par de fluidos, sendo que em alguns deles o processo de interesse pode ser modelado como se um fluido deslocasse o outro em uma geometria fechada. Esta geometria pode apresentar configurações variadas. Nesta tese a atenção volta-se para os problemas nos quais a geometria que contém o escoamento pode ser modelada como um tubo capilar. Aqui estão dois exemplos onde se tem aplicado com sucesso o modelo acima.

Processos de revestimento são largamente utilizados em alguma etapa da manufatura de diferentes produtos como fitas magnéticas, adesivos, papéis e muitos outros. Entre todos os processos de revestimento, o modelo de deslocamento de fluidos em tubos capilares é o que melhor representa o acabamento de precisão em superfícies internas de tubos.

A fig.(1.1) é uma representação esquemática de um dos processos de revestimento de superfícies internas de tubos. Inicialmente, preenche-se o tubo com o líquido que se deseja depositar em sua superfície. Em seguida, injeta-se gás por uma das extremidades do tubo. Ao final do processo, uma película de líquido permanece depositada na parede interna, conferindo

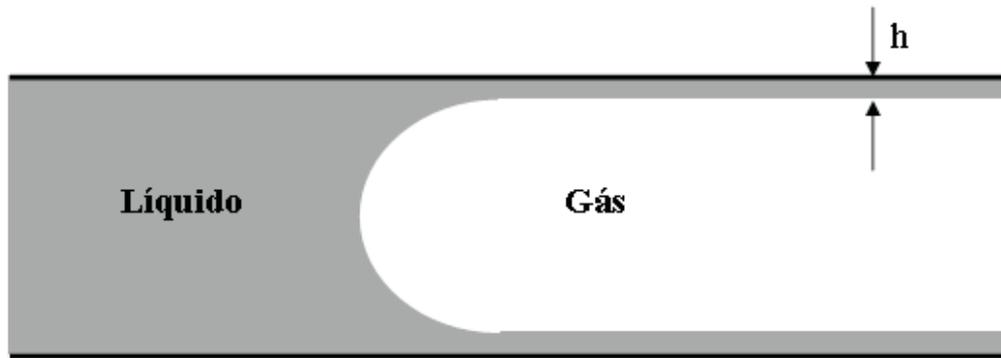


Figura 1.1: Representação de um processo de revestimento de superfícies internas de tubos.

ao tubo um acabamento superficial. Este acabamento é tão mais preciso quanto maior controle se tiver da espessura de filme depositada. Portanto, neste processo deve-se compreender perfeitamente a influência das forças capilaridades. Ainda, na maioria das aplicações o material a ser depositado é um polímero. Logo, faz-se relevante também a análise de suas propriedades reológicas.

A recuperação de óleo em meios porosos é uma atividade de destaque na indústria do petróleo. No processo de recuperação secundária, injeta-se em algum ponto do reservatório um determinado fluido que é responsável pela remoção do óleo. Representa-se do lado esquerdo da fig.(1.2) o processo de remoção de petróleo em meios porosos por injeção de fluido e do lado direito a aproximação do escoamento nos poros como escoamento em um tubo capilar.

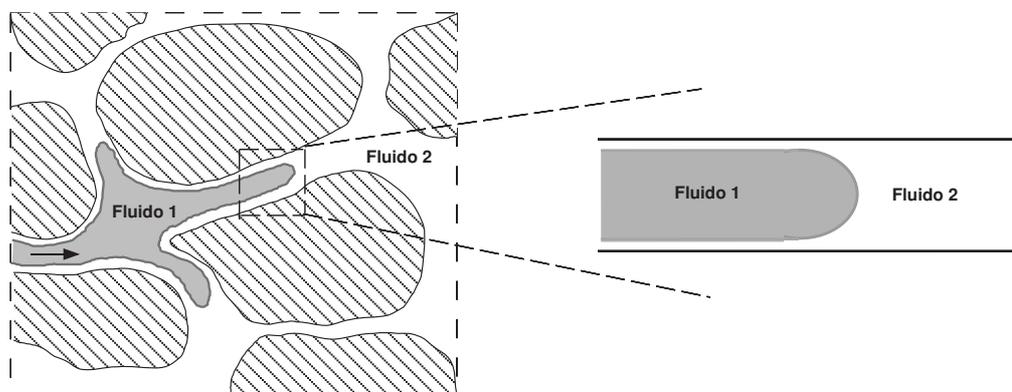


Figura 1.2: Lado esquerdo: representação esquemática do processo de recuperação de óleo por injeção de fluido em um meio poroso. Lado direito: modelo físico do escoamento em um capilar.

O fluido 2 representa o óleo que se deseja extrair do meio poroso e o fluido 1 representa o material injetado. A película de fluido 2 remanescente na parede da rocha contribui para parcela de óleo não recuperado pelo processo. A aproximação dos poros da rocha por um tubo capilar se revela extremamente útil no estudo da eficiência da recuperação de óleo. Analisa-se tal eficiência através do estudo da fração de massa que fica depositada na parede do tubo capilar após a injeção do fluido que atua como removedor. Neste tipo de escoamento, parâmetros como o número de capilaridade, o número de Reynolds e a razão de viscosidades dos fluidos, baseados na escala do diâmetro do poro, são essenciais à análise da fração de massa depositada na parede. Particularmente, para alguns casos do dito processo de recuperação terciária de óleo em meios porosos, os fluidos envolvidos são poliméricos, e então o estudo de parâmetros reológicos se torna igualmente importante.

## 1.2

### Descrição do problema

A fig.(1.3) representa um modelo utilizado na análise do problema do deslocamento de fluidos. Note que  $R_0$  é o raio do tubo e  $R_b$  é o raio da bolha semi-infinita formada pelo fluido deslocador. A diferença entre os raios,  $R_0 - R_b$ , é a espessura do filme líquido depositado na parede do tubo durante o processo.

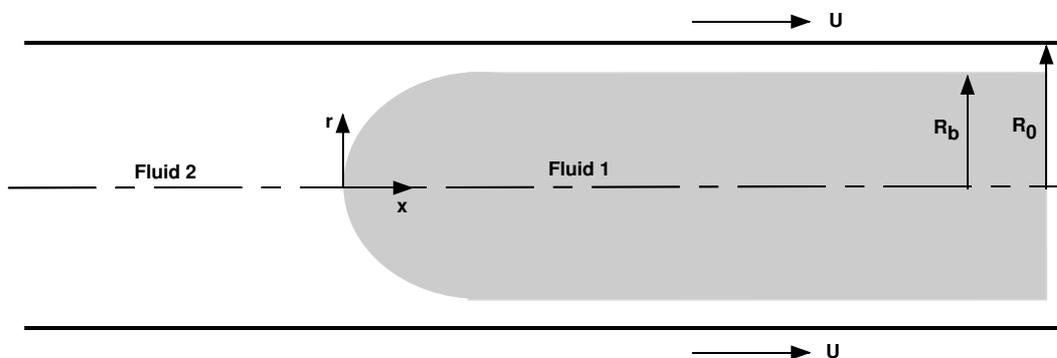


Figura 1.3: Representação do problema de interesse em um sistema de referência posicionado na ponta da interface.

Uma medida adimensional da espessura de filme líquido depositado na parede usada na literatura é a fração de massa  $m$ , definida como a fração da área da seção reta do tubo coberta pelo líquido após a passagem do fluido deslocador,

$$m = 1 - \frac{R_b^2}{R_0^2}. \quad (1-1)$$

Quando o fluido deslocador é invíscido, uma análise simples de conservação de massa sobre um volume de controle ao redor da ponta da bolha permite escrever essa fração de massa como:

$$m = 1 - \frac{\bar{U}}{U}, \quad (1-2)$$

em que  $U$  é a velocidade da ponta da bolha e  $\bar{U}$  é a velocidade média da fase deslocada suficientemente distante da ponta da bolha.

Quando a viscosidade do fluido deslocador não pode ser desprezada em face da viscosidade do fluido deslocado, a razão de viscosidades surge como um parâmetro de interesse. Definindo a razão de viscosidades como a viscosidade do fluido deslocado (fluido 2) sobre a viscosidade do fluido deslocador (fluido 1), tem-se

$$N_\eta = \frac{\eta_2}{\eta_1}. \quad (1-3)$$

O controle da espessura de filme líquido depositado na parede depende da avaliação de fatores como razão de viscosidades, capilaridade e, no caso de um ou ambos os fluidos serem não Newtonianos, parâmetros reológicos. Como esta tese pretende investigar o deslocamento de líquidos viscoelásticos em um tubo capilar por meio da injeção de um gás, aqui  $N_\eta \gg 1$ .

Nos problemas de interesse desta tese o líquido deslocado é uma solução polimérica, portanto apresenta comportamento não Newtoniano. Forças viscoelásticas próximas à interface alteram o balanço de forças nessa região, e conseqüentemente alteram a configuração da superfície livre e a fração de massa. Os dois grupos adimensionais no deslocamento de líquidos viscoelásticos em tubos capilares são o número de capilaridade,  $Ca$ , que é uma razão de forças viscosas e forças de tensão superficial,

e o número de Weissenberg,  $We$ , que é uma razão entre um tempo de relaxação característico do líquido e um tempo característico do processo de deformação:

$$Ca = \frac{\eta U}{\sigma}, \quad We = \lambda \dot{\gamma}_w. \quad (1-4)$$

Aqui,  $\eta$  é a viscosidade total da fase líquida,  $U$  é a velocidade da bolha,  $\sigma$  é a tensão interfacial entre o gás penetrante invíscido e o líquido deslocado,  $\lambda$  é um tempo de relaxação característico do líquido e  $\dot{\gamma}_w = 2U/R_0$  é a taxa de cisalhamento (Newtoniana) na parede, suposta ser característica do processo.

### 1.3 Fluidos não Newtonianos

Muitos dos fluidos utilizados nos processos industriais relacionados com o problema de interesse desta tese são soluções poliméricas que apresentam comportamento mecânico não Newtoniano. À Reologia, ramo da ciência que estuda a deformação e o escoamento da matéria, tem-se atribuído a missão de caracterizar o comportamento desses fluidos. Essa missão é guiada por três conceitos teóricos: cinemática, leis de conservação e relações constitutivas. A cinemática estuda o movimento da matéria independente da força que o gerou, descrevendo as mudanças nas formas dos corpos com o passar do tempo. As leis de conservação são as hipóteses primordiais que lidam com forças, tensões e transferências de energia durante o movimento dos corpos. E as relações constitutivas unem os conceitos anteriores, relacionando as tensões impostas sobre os materiais com as deformações sofridas pelos mesmos.

A enorme variedade de equações constitutivas existente pode ser classificada em três grandes grupos: modelos algébricos, diferenciais e integrais. A escolha da equação constitutiva apropriada para modelar um certo escoamento deve ser pautada em critérios tais como tipo de escoamento, propriedades de interesse relevantes, recurso computacional disponível, nível de pre-

cisão desejado, entre outros. Com exceção das idealizações de fluidos Newtonianos (puramente viscosos) e sólidos Hookeanos (puramente elásticos), que obedecem a relações lineares, as equações constitutivas são quase sempre não lineares. Apresenta-se uma extensa revisão dos diversos tipos de equações constitutivas em Bird *et al.* [2] e Larson [30].

Fluidos Newtonianos podem ser caracterizados por uma única propriedade material, dependente da temperatura, da pressão e da composição, mas independente da taxa de deformação (uma medida da cinemática do escoamento). Dá-se a essa propriedade o nome de viscosidade. Por outro lado, os fluidos não Newtonianos não podem ser caracterizados por uma única propriedade, sendo necessárias medições reológicas em cisalhamento simples e extensão para evidenciar e quantificar propriedades possíveis tais como:

1. Viscosidade dependente do cisalhamento: pode decrescer (comportamento pseudo-plástico) ou aumentar (comportamento dilatante) com a taxa de cisalhamento;
2. Viscosidade extensional: geralmente cresce com a taxa de extensão;
3. Diferença de tensões normais não nula mesmo em escoamentos de cisalhamento simples;
4. Tensão dependente da história de deformação do material (efeito de memória).

Estas propriedades dão origem a comportamentos particulares que exigem um estudo aprofundado a fim de otimizar os processos que envolvem tais fluidos.

O comportamento peculiar dos fluidos não Newtonianos em escoamentos que ocorrem em processos industriais pode acarretar alterações significativas no padrão de escoamento. Nos casos particulares da presença de líquidos viscoelásticos nos processos de revestimento da superfície interna de tubos e da recuperação de óleos em meios porosos, as propriedades não Newtonianas alteram o balanço de forças nas imediações da superfície livre, alterando, portanto, os parâmetros de otimização do processo.

## 1.4

### Estado da arte

Muitas variáveis interessantes compõem o estudo do deslocamento de fluidos em tubos capilares. Dentre elas podemos citar o estudo da cinemática do escoamento, da diferença nos padrões de escoamento devida à reologia do par de fluidos, e também de fenômenos de instabilidade que ocorrem em certa combinação parâmetros. Há uma profusa literatura a respeito de cada um desses componentes. A fim de respeitar o escopo desta tese, nem todos os aspectos da pesquisa serão expostos nesta seção; no entanto, quando a ilustração se fizer didática, pretende-se abordar as referências importantes ao longo do texto.

A partir de agora alguns trabalhos relevantes à realização desta tese serão apresentados. Primeiramente, abordam-se os trabalhos clássicos na área, a fim de se apresentar os resultados que estabelecem as bases da teoria. Em seguida, citam-se os mais recentes avanços no problema de gás deslocando líquidos viscoelásticos.

### Deslocamento de líquidos Newtonianos

O primeiro estudo experimental de uma longa bolha de gás penetrando um líquido foi realizado por Fairbrother e Stubbs [17], que investigaram a penetração de uma bolha de ar através de um líquido Newtoniano em um tubo. Seu interesse era saber se a velocidade de uma bolha de ar em um tubo capilar através do qual um líquido está escoando é uma função da velocidade do escoamento. Identificando  $U$  como a velocidade da bolha,  $\sigma$  como a tensão interfacial e  $\mu$  como a viscosidade do líquido, os autores sugeriram que a fração de massa adimensional  $m$  que cobriria a parede após a passagem da bolha deveria ser uma função de  $\mu U/\sigma$ , já que esta é a única combinação adimensional destas três grandezas. Seus experimentos foram limitados ao caso em que  $m$  é pequeno, e seu resultado mais importante é

a proposição de uma relação direta entre a fração de massa  $m$  e o número de capilaridade  $Ca$  dada por  $m = Ca^{\frac{1}{2}}$ .

A primeira análise teórica do deslocamento de fluidos em tubos capilares foi desenvolvida por F. B. Bretherton [7]. Este pesquisador também estuda o movimento de longas bolhas de ar em tubos capilares preenchidos por líquidos Newtonianos viscosos. No estudo, considera-se um escoamento lento, com ângulo de contato entre a bolha e a parede nulo e tensão superficial constante. No problema do deslocamento de fluidos, Bretherton supõe esforço tangencial nulo na interface, bem como baixos números de capilaridade. Bretherton toma o cuidado de ensaiar com tubos de diâmetro suficientemente pequenos de modo que se possam desprezar efeitos gravitacionais. Uma análise teórica mostra que a velocidade  $U$  da interface excede a velocidade média do escoamento por um valor de  $WU$ , em que  $W = 1,29(3Ca)^{\frac{2}{3}}$ . Bretherton obtém  $W$  analisando apenas as regiões frontal e de transição da bolha. Em uma primeira aproximação, ele considera um escoamento planar na região distante dos extremos da bolha. Mais tarde inclui os efeitos de curvatura nas equações, obtendo resultados semelhantes aos da primeira aproximação com erro máximo de 10%. O autor compara alguns de seus resultados experimentais com as previsões teóricas para  $W$ . Observa-se uma concordância razoável entre as abordagens experimental e teórica, principalmente na faixa superior de capilaridade analisada.

No mesmo ano, G. I. Taylor [42] publica um trabalho onde desenvolve novo estudo experimental do processo de remoção de líquidos Newtonianos em tubos capilares por injeção de gás. O objetivo principal era determinar a parcela de massa depositada na parede do tubo durante o escoamento. Taylor apresenta, em um gráfico muito citado posteriormente, a variação da massa depositada,  $m$ , em função do número de capilaridade,  $Ca$ . A análise gráfica sugere um valor limite para  $m$  de aproximadamente 0,56 quando o número de capilaridade se aproxima de 2. Já em 1935, como mencionado, Fairbrother e Stubbs haviam proposto uma relação direta de  $m$  com o número de capilaridade dada por  $m = Ca^{\frac{1}{2}}$ . Taylor compara seus resultados experimentais com a equação empírica proposta por Fairbrother e Stubbs, e verifica que esta relação só é válida para uma faixa muito estreita

de números de capilaridade de  $0 < Ca < 0,09$ . Sem fazer experimentos de visualização, Taylor ainda sugere três possíveis padrões de linhas de corrente em relação a uma bolha estacionária. Para baixos números de capilaridade o escoamento deveria apresentar grandes recirculações com presença de anéis e pontos de estagnação. À medida que se aumentasse o número de capilaridade as recirculações desapareceriam, permitindo a existência de um único ponto de estagnação.

Dois anos depois, B. G. Cox [12] publica a continuação do estudo experimental iniciado por Taylor e conclui que a fração de massa depositada na parede assintotiza para aproximadamente 0,60 quando o número de capilaridade tende a 10. Cox ainda desenvolve uma análise teórica simplificada para o cálculo de  $m$ . Sua análise mostra-se adequada nos casos em que as forças devidas à tensão superficial são desprezíveis frente as forças viscosas ( $Ca \gg 1$ ).

A fim de confirmar os padrões de linhas de corrente à frente da bolha sugeridos por Taylor, Goldsmith e Mason [19] e, no ano seguinte, B. G. Cox [13], desenvolveram experimentos de visualização. Os padrões são confirmados apenas para valores extremos de capilaridade ( $Ca \gg 1$  e  $Ca \ll 1$ ). No entanto, o padrão de transição não pôde ser observado. O padrão de recirculação intermediário sugerido por Taylor foi observado apenas através de simulações numéricas, obtido primeiramente por Giavedoni e Saita [18], estudando o caso axissimétrico de gás deslocando um líquido Newtoniano. Eles sugerem que um padrão de recirculação com dois pontos de estagnação localizados na linha de simetria ocorreria em um número de capilaridade na faixa de  $0,605 \leq Ca \leq 0,690$ .

### **Deslocamento de líquidos viscoelásticos**

Ro e Homsy [39] apresentaram um estudo teórico sobre o efeito da elasticidade na forma do menisco e na espessura do filme líquido para o escoamento induzido por uma longa bolha de ar deslocando, em regime permanente, um líquido polimérico confinado entre duas placas paralelas,

isto é, um escoamento de Hele-Shaw. Utilizando o método das perturbações os autores pesquisaram soluções assintóticas para resolver o problema, supondo que o líquido deslocado molhava completamente a parede e que tanto o número de capilaridade quanto o número de Weissenberg eram pequenos. A equação constitutiva de Oldroyd-B foi usada para modelar o líquido viscoelástico, e os autores reforçaram o argumento de que a região de transição entre a ponta do menisco e o filme sobre a bolha é onde ocorrem os maiores efeitos reológicos. Uma análise detalhada de seu trabalho permite concluir que os principais mecanismos neste escoamento são a resistência à deformação (inibição do esticamento) ao longo da linha de corrente, tendendo a diminuir a espessura do filme líquido em relação ao caso Newtoniano correspondente, e o surgimento de tensões elásticas, tendendo a aumentar a espessura deste filme. De acordo com sua análise, no limite de baixos valores de  $Ca$  e  $We$  os efeitos elásticos são mais importantes frente aos efeitos de capilaridade, diminuindo a espessura de filme, o que implica na afirmação de que a resistência à deformação ao longo da linha de corrente é o mecanismo dominante nesta faixa de parâmetros.

P. C. Huzyak e K. W. Koelling [27] realizam o estudo experimental de penetração de uma longa bolha deslocando um líquido viscoelástico em um tubo capilar. O trabalho apresentado neste artigo é dirigido à identificação dos efeitos elásticos na fração de massa depositada na parede do tubo durante o processo de injeção do gás. Os autores realizaram experimentos com quatro fluidos de teste, sendo dois fluidos Newtonianos e dois fluidos de Boger (líquidos altamente elásticos mas que apresentam viscosidade constante em testes de cisalhamento). Conduziram-se os experimentos de modo que as contribuições devido às forças inerciais e gravitacionais eram desprezíveis. Obtêm-se resultados para a fração de massa depositada,  $m$ , em função do número de capilaridade,  $Ca$ , e do número de Deborah,  $De$ . O número de Deborah mede o desvio do comportamento Newtoniano de um fluido elástico, e é definido pela relação entre um tempo de relaxação característico do fluido e um tempo característico do processo de deformação (escoamento) relevante. Os autores observam que para baixos números de Deborah,  $De < 1$ , tanto líquidos Newtonianos quanto líquidos elásticos

exibem frações de massa depositada na parede idênticas para números de capilaridade equivalentes. A fração de massa depositada dos líquidos elásticos começa a crescer em comparação com a dos líquidos Newtonianos para  $De \approx 1$  e segue a tendência para valores maiores de  $De$ . Em  $De \approx 5$  a fração de massa dos líquidos elásticos é aproximadamente 30% maior do que o resultado Newtoniano. Apesar de em um gráfico de  $m$  versus  $Ca$  a fração de massa depositada ser independente do diâmetro do tubo para o caso Newtoniano,  $m$  se apresenta como uma função forte do diâmetro do tubo para o caso de líquidos elásticos.

Continuando o trabalho anterior, V. Gauri e K. W. Koelling [28] realizam uma investigação numérica e experimental do deslocamento de fluidos viscoelásticos por injeção de gás, agora concentrando a atenção na dinâmica do escoamento à frente da interface. Os experimentos de visualização são realizados com uma técnica de processamento digital de imagens de baixa densidade de partículas traçadoras, onde se pode rastrear partículas individuais nas imagens. Esta técnica é chamada de velocimetria por acompanhamento de partículas (Particle Tracking Velocimetry - PTV). Os autores apresentam linhas de corrente e linhas de taxa de cisalhamento e taxa de extensão constantes, tanto para os fluidos Newtonianos quanto para os fluidos de Boger ensaiados. Mostram que a fração de massa depositada é função única do número de capilaridade para fluidos Newtonianos, mas que varia com o número de Deborah para os fluidos elásticos, sugerindo que um aumento na viscosidade extensional dos fluidos de Boger afeta significativamente a fração de massa depositada na parede. Simulações numéricas dos campos Newtonianos são realizadas por meio do código comercial POLYFLOW a fim de validar as técnicas experimentais.

Outro estudo importante que trata do escoamento de fluidos viscoelásticos na presença de superfícies livres foi apresentado recentemente por Lee *et al.* [32]. Eles aplicaram uma formulação numérica em elementos finitos para estudar o efeito da viscoelasticidade em escoamentos de superfície livre, analisando tanto um escoamento de Hele-Shaw quanto a deposição de uma camada fina de um líquido viscoelástico sobre um substrato em movimento. Os líquidos viscoelásticos foram modelados por três

equações constitutivas distintas: os modelos Oldroyd-B, FENE-P e FENE-CR. Os cálculos mostraram a formação de uma camada limite de tensões elásticas na região adjacente à interface, e atribuiu-se às tensões poliméricas associadas a essa camada limite a causa da mudança na forma do menisco implicando no aumento da espessura do filme líquido depositado nas paredes sólidas.

O trabalho relevante mais abrangente encontrado sobre deslocamento de líquidos viscoelásticos por injeção de gás pertence aos autores F. Kamisli e M. E. Ryan [24]. Este é um trabalho completo, com análises teóricas e experimentais do deslocamento de fluidos Newtonianos, pseudoplásticos (shear-thinning) e viscoelásticos em geometrias tais como tubos circulares, canais de seção reta retangulares e quadradas. Seus resultados concordam com o de pesquisadores anteriores, e a conclusão mais importante para o objeto desta tese é a de que, em experimentos com fluidos de Boger, a fração de massa depositada na parede de tubos capilares é maior do que aquela comparada com fluidos Newtonianos.

## 1.5

### Objetivos da investigação

O objetivo fundamental deste trabalho é estender a investigação da influência da elasticidade dos líquidos viscoelásticos na variação da espessura do filme líquido remanescente na parede de tubos capilares após a injeção de um gás.

A espessura do filme líquido que reveste a parede interna de um tubo capilar após a passagem de um gás resulta do equilíbrio dinâmico desse escoamento de deslocamento, ou seja, do balanço de forças na superfície livre. As propriedades viscoelásticas do fluido deslocado modificam os campos de velocidade e pressão, alterando a forma da interface respectivamente ao caso Newtoniano de referência. Os parâmetros de otimização do processo de controle da camada de revestimento, ou da eficiência de extração de líquido, podem ser, então, modificados de acordo com o interesse.

Neste trabalho, a espessura do filme líquido será estudada através de uma abordagem numérica, resolvendo as equações governantes do problema, bem como através de uma abordagem experimental, por meio da medição de massa depositada e visualização da frente da bolha. Comparações qualitativas serão efetuadas por meio da construção de curvas relacionando a massa depositada na parede com parâmetros adimensionais relativos às características de vazão (operacional) e reológicas (material). Porém, devido às soluções numéricas de escoamentos de modelos viscoelásticos com superfície livre possuírem uma limitação quanto ao nível de solicitação em extensão, os quais normalmente são ultrapassados nos experimentos com soluções poliméricas correspondentes, comparações quantitativas serão apenas sugeridas.

## 1.6

### Roteiro da tese

O Capítulo 2 desta tese apresenta a formulação matemática, onde são examinadas as equações governantes do problema geral de escoamentos com superfícies livres bem como a formulação mais específica do problema de deslocamento de líquidos viscoelásticos em tubos capilares. Em seguida são abordados tópicos quanto ao Método de Elementos Finitos, utilizado para a discretização do domínio no presente problema.

O Capítulo 3 apresenta os resultados numéricos, com a descrição das etapas preliminares a serem resolvidas que permitem a solução do problema objeto desta tese. Em seguida, a fim de validar o código numérico, são reproduzidos os resultados para fluidos Newtonianos encontrados na literatura. E por fim são apresentados os resultados para fluidos viscoelásticos usando os modelos diferenciais já mencionados. O foco da investigação está no efeito da viscoelasticidade na interface bem como na eficiência de deslocamento.

O Capítulo 4 trata dos métodos utilizados nos experimentos, onde são descritas as ferramentas utilizadas e seu princípio de funcionamento, e segue detalhando a montagem experimental, abordando desde a função das

principais partes do experimento até o procedimento experimental em si e o tratamento dos dados.

O Capítulo 5 trata da caracterização reológica das soluções poliméricas utilizadas como fluido de trabalho. Aborda as propriedades desejadas aos fluidos necessárias aos objetivos da tese, um esquema de preparação destes fluidos em laboratório, e finalmente apresenta tabelas com os valores das propriedades físicas medidas.

O Capítulo 6 apresenta os resultados experimentais, novamente focando na eficiência de deslocamento bem como nos efeitos viscoelásticos na interface. Resultados inéditos na literatura são encontrados e comparações qualitativas com os resultados numéricos são apresentadas.

O Capítulo 7 comenta sobre os principais pontos investigados nesta tese, seus sucessos e fracassos, bem como apresenta algumas sugestões para trabalhos futuros.