





# REOMETRIA FLUIDELOR COMPLEXE ÎN PREZENȚA SUPRAFEȚELOR STRUCTURATE



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

## **RAPORT FINAL**

Etapa IV – Septembrie 2016

### Componența echipei științifice:

Prof. dr. ing. Corneliu Bălan (director) Conf. dr. ing. Diana Broboană Şl. dr. ing. Nicoleta Tănase Drd. Ioana Omoncea Drd. Rodica Damian

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

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

#### 1. Îndeplinirea obiectivelor proiectului

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

S-au urmărit două direcții principale de studiu:

- (i) Influența suprafețelor structurate asupra caracterizării comportamentului reologic al fluidelor complexe în configurația placă – placă<sup>1</sup>;
- (ii) Studiul și analiza dinamicii fluidelor simple și complexe în vecinătatea suprafețelor structurate<sup>2</sup>.

Studiul dinamicii fluidelor în vecinătatea suprafețelor structurate are potențial aplicativ ridicat, acest subiect fiind direct legat de o problemă fundamentală din mecanica fluidelor: modificarea și controlul condițiilor la limita domeniului de curgere, respectiv impunerea corectă a condițiilor la limită în procedurile numerice de soluționare a sistemului de ecuații Navier-Stokes.

Ideea pe care s-a bazat acest proiect este urmatoarea:

Studierea fenomenului de alunecare la perete este indicat să se realizeze în vecinătatea suprafețelor structurate, definite ca suprafețe solide pe care sunt construite macro- sau micro-structuri cu geometrii bine definite. Interacțiunea dintre fluidul vâscos și structuri poate oferi informații nu numai despre fenomenul de alunecare la perete, dar și privitoare la comportamentul reologic al fluidelor testate, prin corelarea datelor experimentele cu simulările numerice.

Plecând de la observația că anumite micro-structuri au capacitatea să inducă efecte similare fenomenului de *fluidofobicitate* (denumit generic pentru orice tip de fluid *hidrofobicitate*), studiile experimentale au fost axate pe investigarea/modelarea fenomenului de alunecare la perete în configurația reometrică placă-placă, în conexiune cu influența micro-structurilor asupra hidrodinamicii în vecinătatea suprafețelor solide.

Concluziile și rezultatele studiilor efectuate în acest proiect sunt următoarele:

**1.1** Dezvoltarea reometriei în prezența suprafețelor structurate contribuie la o caracterizare reologică completă a fluidelor complexe, cu precădere a fluidelor instabile din punct de vedere constitutiv. Corelarea datelor experimentale obținute cu simulările numerice permite atât testarea modelelor reologice în curgeri 3D, cât și diferențierea mult mai clară a alunecării reale la perete (*wall slip*) de apariția fenomenului *shear banding* (formarea în imediata apropiere a peretelui solid a unui strat cu o viteză de deformație foarte mare), asociat alunecării aparente a fluidului la perete.

Diferențierea dintre alunecarea reală la perete și alunecarea aparentă reprezintă un subiect științific actual și de mare importanță teoretică și aplicativă în reologia fluidelor complexe.

Studiile experimentale efectuate au pus în evidență două concluzii importante:

- 1.1.1 Prezența suprafețelor micro-structurate poate induce efecte similare hidrofobicității la contactul fluidelor slab vâscoase cu pereții solizi, fără să se modifice condiția de aderență.
- 1.1.2 Folosirea suprafețelor structurate în testele reologice aduce informații valoroase asupra fenomenului de alunecare la perete (reală sau aparentă) a fluidelor complexe caracterizate de un prag de curgere (*yield stress*). Pe baza testelor efectuate se poate proiecta un

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Broboana D., Tanase N.O., Balan C. (2015) *Influence of patterned surface in the rheometry of simple and complex fluids*, J. Non-Newtonian Fluid Mech. 222, 151–162

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Tanase N.O., Broboana D., Balan C. (2014) *Free surface flow in vicinity of an immersed cylinder*, Proc. Rom. Acad., Series A 15(4),371–378; Tanase N. O., Damian I. R., Broboana D., Balan C. (2016) *The influence of grooved surface and liquid properties on vortices formation in vicinity of immersed cylinders*, Energy Procedia 85, 521 – 529.

dispozitiv care să detecteze fenomenul de alunecare și să-l caracterizeze/cuantifice pentru fluidele foarte vâscoase din categoria *soft solids*<sup>3</sup>.

Aceste analize au o importanță deosebită pentru: (i) dezvoltarea unor noi proceduri de testare și caracterizare reologică a fluidelor complexe<sup>3</sup>, (ii) stabilirea comportamentului fluidelor testate în imediata vecinătate a peretelui solid, problema centrală în dezvoltarea unor noi aplicații din domeniul lab-on-a-chip (cum ar fi focusarea<sup>4</sup> în prezența suprafețelor micro-structurate).

**1.2** Procedura de analiză a măsurătorilor reometrice denumită *numerical rheometry* (interpretarea măsurătorilor reometrice folosind simulările numerice, termen și procedură introdusă de grupul REOROM) și-a dovedit aplicabilitatea și potențialul în determinarea calitativă și cantitativă a funcțiilor de material, în particular a viscozității în mișcări dominant de forfecare.

Corelarea soluțiilor numerice cu datele experimentale obținute în prezența suprafețelor microstructurate a contribuit la stabilirea mecanismului ce conduce la scăderea efortului de frecare măsurat pe placa superioară a reometrului (asociat fenomenului de alunecare aparentă).

De asemenea, extinderea soluțiilor numerice la alte cofigurații (similare celor reometrice) a condus la dezvoltarea unor noi aplicații legate de folosirea suprafețelor micro-structurate în procesele de separare și filtrare a fluidelor complexe<sup>5</sup>.

**1.3** Analiza și modelarea curgerilor în prezența suprafețelor structurate a contribuit la deschiderea a trei noi direcții potențiale de dezvoltare a cercetării în cadrul grupului REOROM:

- 1.3.1 Influența suprafețelor structurate asupra dinamicii curgerii în jurul corpurilor imersate<sup>6</sup>.
- 1.3.2 Analiza curgerilor în micro-canale cu pereți structurați<sup>7</sup>.
- 1.3.3 Folosirea suprafețelor ceramice în microfluidică<sup>8</sup>.

Rezultatele obținute au fost publicate în revistele Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics și Polymer, reviste representative pe plan mondial pentru mecanica fluidelor ne-newtoniene și reologie (ambele cotate în categoria Q1 din WOS).

În aceeași categorie (Q1) se încadrează și revista Journal of Membrane Science în care Corneliu Balan a publicat, împreună cu un colectiv international, rezultate ale unor studii reologice ce se vor aplica în formularea unui nou material ceramic folosit pentru obținerea membranelor.

Principalele lucrări se pot consult ape pagina de web a proiectului:

http://www.hydrop.pub.ro/index.php/cercetare/proiecte/in-desfasurare/99-pn-ii-id-0245

În urma acestui proiect s-au publicat: 6 lucrări ISI (5 în categoria Q1), 9 lucrări ISI Proceedings, 3 lucrări BDI (SCOPUS) și s-au susținut 20 de comunicări la Congrese Internaționale, Conferințe Europene și Simpozioane Internaționale.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> Coblas D., Broboana D., Balan C. (2016) *Correlation between large amplitude oscillatory shear (LAOS) and steady shear of soft solids at the onset of the fluid rheological behavior*, Polymer, 10.1016/j.polymer.2016.06.003

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> Damian I. R., Hardt S., Balan C. (2016) *Focusing and diffusion processes in microchannels*, U.P.B. Sci. Bull., Series D, 78(3), 177-184.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> Broboana D., Tanase N.O., Balan C. (2016) *Shear banding formation in vicinity of micro-patterned surfaces*, D1 R4 M3A in Proc. of The XVIth Int. Congress on Rheology, ICR XVII, Kyoto, Japan, 8-13 august 2016

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> Tănase N. O., Broboană D., Bălan C. (2017) *Numerical and experimental investigations of the flow configuration in vicinity of immersed smooth and patterned* cylinders, Proc. Romanian Acad. series A, to be published

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup> Damian I.R., teza de doctorat UPB în fază de finalizare.

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup> Sandra F., Ballestero A., Nguyen V.L., Tsampas M.N., Vernoux Ph., Balan C., Iwamoto Y., Demirci U.B., Miele Ph., Bernard S. (2016) *Silicon carbide-based membranes with high soot particle filtration efficiency, durability and catalytic activity for CO/HC oxidation and soot combustion*, J. Membrane Scie. 501, 79–92

În prezent se află în fază de concepție și testare experimentală (cu intenția să fie brevetat) un dispozitiv și procedura aferentă pentru caracterizarea comportării reologice a fluidelor complexe la peretele solid.

#### LISTA PRINCIPALELOR LUCRĂRI PUBLICATE ÎN CADRUL PROIECTULUI 2014 - 2016 OURNALS

#### ISI JOURNALS

1. <u>Bălan C.</u>, Ionescu E., Kleebe H-J., Muller M., Guillon O., Schliephake D., Heilmaier M., Riedel R., (2015), *High-Temperature Creep Behavior of SiOC Glass-Ceramics: Influence of Network Carbon Versus Segregated Carbon*, J. Am. Ceram. Soc., 97(12), 3935-3942, DOI: 10.1111/jace.13206.

2. <u>Broboană D., Tănase N. O., Bălan C.</u> (2015), *Influence of patterned surface in the rheometry of simple and complex fluids*, J. Non-Newtonian Fluid Mech., 222, 151–162, DOI: 10.1016/j.jnnfm.2014.10.006.

3. <u>Tănase N. O., Broboană D., Bălan C.</u> (2014), *Free surface flow in vicinity of an immersed cylinder*, Proc. Romanian Academy Series A - Mathematics Physics Technical Sciences Information Science, 15(4), 371-378.

4. Fabien S., Ballestero A., NGuyen Van L., Tsampas M., Vernoux P., <u>Bălan C.</u>, Iwamoto Y., Demirci U., Miele P., Bernard S., (2016), Silicon Carbide-based Membranes with High Soot Particle Filtration Efficiency, Durability and Catalytic Activity for CO/HC Oxidation and Soot Combustion, J. Membr. Sci., 501, 79-92, DOI:10.1016/j.memsci.2015.12.015

5. Gonzalo de Juan I., Tulyaganov D. U., <u>Bălan C.</u>, Linser R., Ferreira J. M. F., Riedel R., Ionescu E. (2016) *Tailoring the viscoelastic properties of injectable biocomposites: A spectroscopic assessment of the interactions between organic carriers and bioactive glass particles*, Materials and Design, 97, 45-50, DOI: 10.1016/j.matdes.2016.02.085.

6.Coblaș D., <u>Broboană D., Bălan C.</u> (2016) *Correlation between large amplitude oscillatory shear (LAOS) and steady shear of soft solids at the onset of the fluid rheological behavior*, Polymer, http://dx.doi.org/10.1016/j.polymer.2016.06.003.

#### ISI PROCEEDINGS.

1. <u>Tănase N.O., Damian I.R., Broboană D., Bălan C.</u> (2016) *The influence of grooved surface and liquid properties on vortices formation in vicinity of immersed cylinders*, Energy Procedia, 85, 521-529, DOI: 10.1016/j.egypro.2015.12.239.

2. Simionescu S. M., <u>Bălan C., (2016)</u> *CFD study on convective heat exchange between impinging gas jets and solid surfaces,* Energy Procedia, 85, 481-488, DOI: 10.1016/j.egypro.2015.12.231

3. <u>Damian I. R., Tănase N. O.</u>, Mărculescu C. V., <u>Bălan C.</u> (2015) *The Influence of Fluid Properties on Flow Dynamics in Microchannels*, Proc. of the 5-th edition of the International Conference on e-Health and Bioengineering, EHB 2015, 18-22.11.2015, Iasi, Romania (IEEE Conference).

4. <u>Omocea I. L.</u> Pătrașcu C.P., <u>Bălan C.</u> (2015) *On the Coalescence of Colliding Jets,* Proc. of the 5-th edition of the International Conference on e-Health and Bioengineering, EHB 2015, 18-22.11.2015, Iasi, Romania (IEEE Conference).

7. Țurcanu M., Siegert N., Tascon L.F., <u>Omocea I.L.</u>, <u>Bălan C.</u>, Gallegos C., Brito-de-la-Fuente E. (2015) *The role of human saliva on the elongational properties of a starch-based food product*, Procc. of the 5-th edition of the International Conference on e-Health and Bioengineering, EHB 2015, 18-22.11.2015, Iasi, Romania (IEEE Conference).

6. <u>Tănase N.O.</u>, <u>Broboană D.</u>, <u>Bălan C.</u> (2015) *Free surface flow over the broad - crested weir*, Proc. of the 9-th International Symposium on Advanced Topics in Electrical Engineering (ATEE), 07- 09 mai 2015, Bucharest, Romania, 548-551 (IEEE Conference).

8. <u>Omocea I.L.</u> Bălan C. M., Senez, V., <u>Bălan C.</u> (2015) *Coalescence of liquid drops with free surfaces*, Procc. of the 9-th International Symposium on Advanced Topics in Electrical Engineering (ATEE), 07- 09 mai 2015, Bucharest, Romania, 573-578 (IEEE Conference).

8. <u>Damian I. R.</u>, Mărculescu, C., <u>Bălan C.</u> (2015) *Experiments and Numerical Simulations of Vortex Ring Formation in Microgeometries*, Proc. of the 9-th International Symposium on Advanced Topics in Electrical Engineering (ATEE), 07- 09 mai 2015, Bucharest, Romania, 585-590 (IEEE Conference).

9. Simionescu S.M., Duzel U., Esposito C., Ilich Z., <u>Bălan C.</u> *Heat Transfer Coefficient Measurements using Infrared Thermography Technique*, Proc. of the 9-th International Symposium on Advanced Topics in Electrical Engineering (ATEE), 07-09 mai 2015, Bucharest, Romania, 591-596 (IEEE Conference).

#### Congrese/Conferințe Internaționale (selecție)

The Annual British Society of Rheology Conference, Lake-Vyrnwy, U.K., 2014

Annual European Rheology Conference – AERC 2014, Karlshure, Germany

Annual European Rheology Conference – AERC 2015, Nantes, France

The 20th Anniversary Meeting of the Europ. Soc. of Rheol. & Graduate Student Workshop Zürich, Elvetia, 2016

Shaping VI - Sixth International Conference on Shaping of Advanced Ceramics, Montpellier, Franta, 2016

The XVIth Int. Congress on Rheology, ICR XVII, Kyoto, Japan, 8-13 august 2016

#### 2. Analiza studiilor efectuate în ultima etapă a proiectului.

Obiectivele prezentului proiect au fost îndeplinite în corformitate cu planul de realizare. Pentru perioada 2013 – 2015 gradul de îndeplinire al obiectivelor și rezultatele obținute au fost prezentate în primele trei rapoarte intermediare.

Obiectivele ultimei etape ale proiectului (corespunzătoare anului 2016) au fost următoarele:

- 2.1 Proiectarea și testarea unui dispozitiv pentru măsurarea alunecării la perete;
  - Activități: (i) consultare externă, (ii) upgrade reometrul rotational, (iii) comunicarea rezultatelor la Congresul Internațional de Reologie ICR 2016.
- **2.2** Stabilirea metodologiei de caracterizare a reologiei fluidelor complexe în prezența suprafețelor structurate;
  - Activități: (i) finalizarea studiilor experimentale și formularea unei *benchmark problem*, (ii) testarea metodologiei.

#### 2.1 Testarea unui dispozitiv pentru măsurarea alunecării la perete

Dispozitivul prevăzut a se realiza are ca scop caracterizarea calitativă a fenomenului de alunecare la perete și cuantificarea acestuia pentru fluide complexe din categoria *soft solids*<sup>3</sup>.

Dispozitivul aflat în faza de proiect va reproduce procedura de testare experimentată în laboratorul REOROM folosind reometrul rotațional în configurația de bază placă – placă (placa inferioară este fixă și placa superioară este mobilă, pe aceasta măsurându-se atât viteza de rotație cât și momentul de frecare).

Această procedură care se bazează pe următoarele principii și constatări:

(i) Fenomenul de alunecare la perete este o caracteristică ce depinde atât de proprietățile fluidului, cât și de cele ale materialului din care este realizată suprafața solidă (denumită generic *perete*). Alunecarea la perete poate fi: (i) reală (nu există particule fluide total aderente la perete), sau (ii) aparentă (la perete rămân atașate straturi moleculare ale fluidului testat).

Alunecarea aparentă se manifestă prin formarea a cel puțin două straturi de fluid ce se deplasează în spațiul dintre cele două plăci cu viteze de deformație diferite. Diferența dintre aceste viteze de deformație este de cel puțin un ordin de mărime, ceea ce implică (în majoritatea cazurilor) că stratul cu viteza de deformație mare (dezvoltat în imediata vecinătate a unei perete) are o grosime foarte mică comparativ cu distanța dintre plăci.

- (ii) Materialele soft solids se pot reprezenta generic ca o structură deformabilă ce se află imersată într-un mediun lichid vâscos, ele menținându-și forma sub acțiunea greutății proprii. Aceste materiale prezintă într-o mișcare dominant de forfecare un prag de curgere  $\sigma_0$  (*yield stress*), asociat unei deformații specifice critice  $\gamma_{0cr}$  (*yield strain*), care separă comportamentul reologic elasto-plastic (caracteristic solidelor) de comportamentul viscoelastic (ce definește fluidul). Stabilirea valorilor pragului de curgere  $\sigma_0$  și al deformației  $\gamma_{0cr}$ , asociată analizei curbei de curgere  $\sigma = \sigma(\dot{\gamma})$  (dependența efortului de frecare  $\sigma$  de viteza de deformație  $\dot{\gamma}$ ) și a variației viscozității diferențiale  $\eta_d \coloneqq d\sigma/d\dot{\gamma}$ , reprezintă parametrii ce vor caracteriza (calitativ și cantitativ) fenomenul de alunecare la perete.
- (iii) Materialele *soft solids* sunt privite, la nivel macroscopic, ca fluide complexe ce pot deveni instabile constitutiv. Pentru astfel de materiale, trecerea de la comportamentul reologic de solid la cel de fluid se realizează într-un domeniu de instabilitate, caracterizat de o abatere

mare a datelor experimentale relativ la media acestora. Zona de instabilitate este asociată atât cu fenomenul de alunecare, cât și cu existența pragului de curgere.

Se consideră că valoarea pragului de curgere, corelată cu mărimea deformației critice, este o măsură cantitativă a fenomenului de alunecare (reale sau aparente)<sup>9</sup>.

- (iv) În general *soft solids* sunt materiale opace, deci folosirea sistemelor de vizualizare/detectare a deformației/curgerii în interiorul lor, sau la suprafața solidă, necesită aparaturi optice specializate.
- (v) Apariția și cuantificare alunecării la perete se va realiza exclusiv în urma analizei curbelor experimentale  $\sigma = \sigma(\dot{\gamma})$  și  $\eta_d = \eta_d(\dot{\gamma})$  obținute folosind un reometru rotațional performant. Măsurătorile se vor realiza la diferite distanțe dintre plăci, pe placa inferioară fiind construite micro/macro structuri cu geometrii tip *pillars*<sup>10</sup>. Placa superioară este întotdeauna discul comercializat de producătorul reometrului (suprafață din oțel inoxidabil netedă). Procedura folosește mai multe plăci inferioare, inclusiv placa reometrului. Plăcile inferioare se vor realiza din materiale metalice sau plastice, în funcție de aplicația dorită.
- (vi) Se pleacă de la ipoteza că geometria plăcii inferioare fixe și distanța dintre cele două discuri induc modificări semnificative asupra măsurătorilor efectuate pe placa superioară netedă dacă fenomenul de alunecare este prezent.

În urma analizei curbelor experimentale și concatenării rezultatelor se poate stabili dacă alunecarea la perete a fost sau nu prezentă.

Corelarea datelor astfel obținute cu modelul reologic Carreau-Yasuda<sup>10</sup> și cu simulările numerice va permite stabilirea tipului de alunecare (reală sau aparentă).

Influența suprafețelor structurate asupra măsurătorilor pentru fluide vâscoase (aderente la suprafața solidă) și distanțe dintre plăci mai mici de 300  $\mu m$  a fost studiată în prima parte a proiectului<sup>1,10</sup>. În cazul folosirea unor plăci inferioare structurate, s-a confirmat că efortul de frecare pe discul superior are valori mai mici decât efortul măsurat în cazul plăcilor netede, 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. 1. De remarcat că în analiza efectuată s-au folosit fluide slab și mediu vâscoase (uleiuri newtoniene, soluții de polimeri slab aditivate) care în mod normal nu prezintă fenomenul de alunecare la perete. În cazurile analizate prezența micro-structurilor reduce mărimea efortului de frecare pe placa superioară netedă, respectiv  $\sigma_s^* < \sigma_0^*$ . Acest fenomen (similar hidrofobicității) se datorează dinamicii particulare a fluidelor dezvoltată în zona micro-structurilor din vecinătatea peretelui fix, fapt confirmat și prin analiză numerică.

Fenomenul de alunecare aparentă, caracterizat de condiția  $b^* > H$ , unde H este înălțimea microstructurilor (Fig. 1), nu s-a manifestat pentru toate micro-geometriile analizate. Alunecarea aparentă s-a remarcat numai în cazul micro-structurilor tip *pillars*, micro-cilindrii distribuiți uniform pe placa inferiară cu înălțimea caracteristică  $H \cong 10 \mu$ m.

Concluzia acestui studiu este următoarea:

În cazul fluidelor slab/mediu vâscoase, normal aderente la suprafețele solide, prezența microstructurilor generează fenomenul de hidrofobicitate datorită hidrodinamicii locale dezvoltate în

<sup>&</sup>lt;sup>9</sup> Broboana D., Ionescu C.S., Balan C. *Viscosity function of fluids which disclose shear banding in rotational rheometers*, to be submitted

<sup>&</sup>lt;sup>10</sup> *Reometria fluidelor complexe în prezența suprafețelor structurate*, rapoarte intermediare 2014/2015.

vecinătatea peretelui. Fenomenul de alunecare aparentă poate fi indus numai de micro-structuri de tip *pillars*, a căror dimensiune caracteristică este mult mai mică decât distanța dintre plăcile reometrului.

Ambele fenomene se remarcă prin scăderea efortului de frecare măsurat pe placa superioară a reometrului față de efortul corespunzător configurației normale (plăci netede).



Figura 1 Configurația placă – placă folosită pentru studiul influenței suprafețelor structurate în reometrie.

Scopul ultimei etape a fost investigarea posibilității de a detecta și cuantifica existența alunecării la perete a fluidelor complexe foarte vâscoase din categoria *soft solids*. Finalitatea cercetării se preconizează a fi realizarea unui dispozitiv ce măsoară alunecarea la perete, plecând de la analiza datelor reometrice obținute în prezența suprafețelor structurate.

În urma rezultatelor obținute pentru fluidele vâscoase aderente la perete, s-a decis folosirea unor suprafețe structurate de tip *pillars*, în care elementul generator sunt cilindrii cu diametrul d = 4mm și înălțimi *H* variabile,  $H \in [0.5 \div 5]$  mm, Fig. 2. Structurile pillars sunt uniform distribuite pe discul inferior și acoperă aproximativ 40% din aria acestuia.

Suprafețele astfel create nu se încadrează în categoria de suprafețe micro-structurate, însă prezintă similitudini geometrice cu suprafețele *pillars* testate cu fluidele slab/mediu vâscoase. S-a avut în vedere ca testele cu materialele *soft solids* să aibă numere Reynolds comparabile cu cele din testele anterioare, respectiv rapoartele  $H/\eta$  să aibă același ordin de mărime pentru viteze de deformații în intervalul 1  $s^{-1} < \dot{\gamma} < 10s^{-1}$ .

Păstrând această similitudine, și având în vedere viscozitatea mare a fluidelor testate (în particular unsori lubrifiante), se pleacă de la ipoteza că diferențele înregistrate între suprafețele netede și cele structurate vor fi induse exclusiv de fenomenul de alunecare (reală sau aparentă) și nu vor fi afectate de hidrodinamica locală a fluidului din vecinătatea peretelui.

S-au efectuat măsurători folosind suprafețe structurate (realizate prin metoda 3D printing) pentru 4 valori ale înălțimii H (2, 2.5, 3, 5 mm), placa superioară mobilă netedă, cu diametrul de 50 mm, fiind poziționată la diferite distanțe h față de structurile cilindrice *pillars*.

Testul reologic standard folosit în măsurători este de tip *strain controlled*, inputul fiind o rampă în viteza de deformație specifică (1s/punct, 10 puncte pe decadă) pentru intervalul  $\dot{\gamma} \in [0.01 \div 10]$  1/s. Domeniul vitezelor de deformație ales corespunde vitezelor mici și medi. La viteze

ale deformației foarte mici sunt necesari timpi foarte mari de testare iar la viteze de deformații mari măsurătorile sunt afectate de efectul centrifugal (expulzarea materialului dintre plăci).

Rezultatele pentru configurația netedă și configurațiile structurate sunt prezentate sub forma dependențelor:  $\sigma = \sigma(\dot{\gamma})$  și  $\eta_d = \eta_d(\dot{\gamma})$ , unde  $\eta_d = d\sigma/d\dot{\gamma}$  definește *viscozitatea diferențială*, v. Fig. 3-7. Analiza măsurătorilor se face în paragraful §2.2 al prezentului raport.

Dispozitivul aflat în fază de proiect este alcătuit din seturi de suprafețe structurate, cu dimensiuni și desimi diferite ale cilindrilor *pillars*, ce se vor fixa pe placa de bază a reometrului. Se preconizează ca dispozitivul să se realizeze în cooperare cu IMT București, Universitatea Chalmers din Suedia și compania Anton Paar-Physica din Stuttgart.



**Figura 2**. Plăcile structurate realizate prin metoda 3D printing și configurația folosită în teste. Placa inferioară (structurată) este fixă, placa superioară (netedă) de rază R se rotește cu turația  $\omega$ . În varianta testată cu reometrul Paar-Physica 301 momentul de frecare M (proportional cu efortul de frecare) se măsoară pe placa superioară. În varianta de prototip (ce se va testa cu reometrul Paar-Physica 702) momentele de frecare se vor măsura pe ambele plăci.

#### 2.2 Caracterizarea reologiei fluidelor complexe în prezența suprafețelor structurate

Metodologia de testare a fluidelor complexe din categoria *soft solids* este similară cu cea folosită pentru fluidele slab și mediu vâscoase<sup>1</sup> (aderente la suprafața solidă și fără prag de curgere), prelucrarea și interpretarea datelor fiind însă diferită.

**În prima etapă a procedurii** se aleg materialele ce urmează să fie testate și se efectuează măsurători pe configurația placă – placă netedă, corespunzătoare configurației reometrice standard.

Fluidele complexe alese sunt: (i) materialul pe care dorim să-l studiem și care prezintă fenomenul de alunecare la perete (în cazul de față o unsoare lubrifiantă pe bază de litiu), și (ii) un material de referință, cu o reologie bine definită anterior ce are un potențial redus de alunecare la perete. Pentru prezentele teste s-a ales o soluție concentrată de 5% xantan în apă cu un comportament similar de tip *soft solid* (ambele material testate fiind caracterizate de un prag de curgere).

În Fig. 3 și Fig. 4 se prezintă datele experimentale, considerate măsurători de referință pentru studiul efectuat.



**Figura 3.** Măsurătorile pentru materialul supus investigației (unsoare lubrifiantă – grease), prezentate comparativ cu datele experimentale corespunzătoare solutiei de xantan (materialul de referință). Zona de instabilitate pentru unsoare este marcată în graficul  $\eta_d = \eta_d(\dot{\gamma})$ . În ambele cazuri se confirmă rezultatul obținut pentru fluidele slab/mediu vâscoase: pentru aceeași viteză de deformație impusă, scăderea distanței dintre plăci determină scăderea efortului de frecare măsurat (deci și a viscozității măsurate). Testele au folosit aceleași date de intrare, timpul de măsurare pentru un punct fiind de 1 s.



**Figura 4** Influența timpului de măsură pe punct asupra curbei de curgere  $\sigma = \sigma(\dot{\gamma})$  pentru materialele testate. Ambele prezintă un prag de curgere aparent  $\sigma_0$  localizat în intervalul  $0.1 < \dot{\gamma} < 1.0$  s<sup>-1</sup>. Comportamentele reologice sunt similare, soluția de xantan fiind însă mai elastică (influența duratei de măsurare asupra curbei de curgere fiind mai relevantă).

Materialul cu potențial de alunecare prezintă două fenomene ce-l diferențiază de materialul de referință:

- Influența distanței dintre plăci asupra măsurătorilor este mai mare la viteze de deformație mici și practic absentă la viteze medii ale deformației. În cazul soluției de xantan variația efortului de frecare cu distanța *h* este monotonă pe intervalul de măsură, curbele de curgere fiind practic paralele, influența lui *h* este observabilă însă nu relevantă cantitativ
- 2. Viscozitatea diferențială, curba  $\eta_d = d\sigma/d\dot{\gamma}$ , are o variație în vecinătatea dependentă de distanța *h* (uneori ne-monotonă) în vecinătatea pragului de curgere. Domeniul respectiv definește zona de instabilitate ce se asociază prezenței alunecării. Acest lucru nu este observabil pentru soluția de xantan, unde pragul de curgere este remarcat printr-un punct unghiular bine definit.

Aceste două observații experimentale pun în evidență în cazul unsorii lubrifiante posibilitatea prezenței fenomenului de alunecare în configurația netedă. Având în vedere distanțele *h* mari la care s-a efectuat experimentul, cel mai probabil fenomenul de alunecarea are loc în vecinătatea discului neted superior mobil.

**În etapa a doua a procedurii** se testează cele două materiale în configurația cu discul inferior fix reprezentat de o suprafață structurată tip *pillars*, v. Fig. 2. Pentru diferite valori *h* se compară (calitativ și cantitativ) datele măsurate în configurația netedă cu cele folosind placa structurată, v. Fig. 5.

Analiza datelor în geometria structurată confirmă prezența fenomenului de alunecare în cazul unsorii lubrifiante:

a) Pentru soluția de xantan efortul măsurat în configurația structurată este mai mic în zona vitezelor mici de forfecare, față de cel obținut pentru placa netedă. Deci structurile pillars generează un efect similar (de hidrofobicitate) celui observat pentru fluidele cu viscozitate mică și medie. Se remarcă totuși la viteze de forfecare medii o tendință de alunecare la suprafețele structurate, în zona atingerii pragului de curgere. Acest observație trebuie însă confirmată de teste reologice ulterioare.

b) În cazul unsorii lubrifiante efortul măsurat pentru configurația structurată este mai mare decât cel înregistrat pentru configurația netedă, zona de instabilitate din curba  $\eta_d = d\sigma/d\dot{\gamma}$  fiind prezentă în ambele configurații.

Aceste observații conduc la următoarea concluzie: este foarte probabil ca fenomenul de alunecare prezent în cazul unsorii să cuprindă ambele componente: (i) alunecarea reală, observabilă în dependența  $\sigma = \sigma(\dot{\gamma})$ , și (ii) alunecarea aparentă (instabilitate constitutivă și apariția fenomenului de *shear banding*), remarcată prin existența zonei de instabilitate în curba  $\eta_d = d\sigma/d\dot{\gamma}$ , atât pentru configurația netedă, cât și structurată.



**Figura 5** Comparație între măsurătorile efectuate în configurații netede și structurate (cu H = 2.5 mm) pentru unsoarea lubrifiantă (grease) și soluția de xantan. Zona de instabilitate pentru unsoare este marcată în curba  $\eta_d = \eta_d(\dot{\gamma})$ , variația viscozității diferențiale cu viteza de deformație fiind în general ne-monotonă (în domeniul respectiv).

**A treia etapă a procedurii** testează existența fenomenului de alunecare și pentru alte dimensiuni ale structurilor (diferite cote *H*), respectiv pentru diferite distanțe *h* între discuri. Rezultatele din Fig. 6 sunt calitativ și cantitativ identice, ceea ce confirmă prezența fenomenului de alunecare (cel puțin aparente) și al instabilității constitutive a unsorii lubrifiante.



**Figura 6** Curba de curgere și variația viscozității diferențiale pentru două geometrii structurate și diferite valori ale distanței h între discuri. Zonele de instabilitate sunt marcate în curba  $\eta_d = \eta_d(\dot{\gamma})$ .

În concluzie, se poate afirma că procedura reometrică bazată pe folosirea unor suprafețe structurate de tip *pillars* în testul placă – placă poate detecta prezența fenomenului de alunecare a fluidelor complexe din categoria *soft solids*. Procedura propusă pune în evidență fenomenul și din punct de vedere cantitativ, prin stabilirea pragului de curgere și a zonei de instabilitate.

Procedura se bazează pe testul *strain controlled* în care inputul este o treptă în viteza de deformație, test ce este aplicat atât configurației placă – placă standard (netedă), cât și suprafețelor cu geometrie structurată.

#### 3. Remarci finale

Prezentul proiect și-a atins principalele obiective științifice propuse. Rezultatele obținute au fost publicate în reviste cu impact ridicat din domeniul reologiei/științei materialelor și comunicate la prestigioase manifestări internaționale. Se preconizează ca cercetările din ultima etapă să se finalizeze printr-un prototip brevetabil și o metodologie de testare a alunecării la perete a fluidelor complexe.

Proiectul a contribuit financiar atât la dezvoltarea bazei experimentale a laboratorului REOROM, cât și la susținerea materială a participării membrilor grupului la importante conferințe internationale. Este de așteptat ca rezultatele cercetărilor dezvoltate în proiect să aibă un impact pozitiv nu numai în cercetare (prin publicații, brevete, noi proceduri de testare dezvoltate), dar și în educația viitorilor masteranzi și doctoranzi ce-și vor desfășura activitatea în grupul REOROM.

În încheierea acestui raport, se prezintă succint câteva studii desfășurate în cadrul proiectului ce au potential de a deschide noi direcții științifice de cercetare, complementare obiectivelor inițiale.

O direcție de cercetare asociată tematicii prezentului proiect a avut ca scop analiza unor soluții de separare/filtrare a componentelor macromoleculare din fluidele complexe (în particular solvent încărcat cu particule, rețele macromoleculare, fibre), în relație cu fenomenul difuziei.

Investigațiile sunt bazate pe modelarea și analiza hidrodinamicii curgerii în vecinătatea suprafețelor microstructurate, respectiv poroase, a fluidelor complexe.

S-au supus analizei patru configurații cu pereți structurați/poroși, fiecare asociată unui proces hidrodinamic distinct: (i) curgerea printr-o rețea deasă de micro-cilindrii<sup>11</sup>, (ii) curgerea între doi cilindrii concentrici, cel exterior fiind construit dintr-un mediu poros, (iii) fenomenul de focusare hidrodinamic în microcanale<sup>12</sup> și (iv) formarea vârtejurilor în cavitățile suprafețelor structurate<sup>13</sup>.

(i) Prima soluție investigată se bazează pe simularea numerică a curgerii fluidelor în vecinătatea suprafețelor structurate tip *pillars*. Lucrarea<sup>10</sup> prezentată în cadrul Congresului ICR la Kyoto din acest an se poate consulta la pagina de web a proiectului.

Mișcarea studiată este 3D de tip Couette; distribuția celor 1512 de micro-cilindrilor pe placa inferioară fixă fiind uniformă (diametrul și înălțimea cilindrilor fiind egale cu100  $\mu$ m). Simulările numerice efectuate au avut ca scop obținerea distribuției viscozității fluidului pe micro-cilindrii și localizarea în domeniul curgerii a așa numitelor benzi cu viscozitate constantă (*shear banding flows*). Se preconizează ca acest tip de geometrie să fie folosită pentru separarea hidrodinamică a componentelor macromoleculare/celulare de solvent.

(ii) Tot în cadrul acestei aplicații s-a testat experimental o procedură de filtrare a fluidelor încărcate cu micro-particule, bazată pe o configurație rotațională în care cilindrul exterior este alcătuit dintr-un mediu poros, Fig. 7. Testele realizate au avut un caracter calitativ, ele urmând să fie coroborate cu simulările numerice ale curgerii într-un mediu poros, problematică enunțată în precedentul raport sintetic intermediar.

<sup>&</sup>lt;sup>11</sup> <u>Broboana D., Tanase N.O., Balan C</u>. (2016) *Shear banding formation in vicinity of micro-patterned surfaces*, D1 R4 M3A in Proc. of The XVIth Int. Congress on Rheology, ICR XVII, Kyoto, Japan, 8-13 august 2016

<sup>&</sup>lt;sup>12</sup> <u>Damian I. R.</u>, Hardt S., <u>Bălan C.</u> (2016), *Focusing and diffusion processes in microchannels*, U.P.B. Scientific Bulletin, Series D: Mech. Eng. 78(3), 177-184.

<sup>&</sup>lt;sup>13</sup> <u>Tănase N. O., Broboană D., Bălan C.,</u> *Numerical and experimental investigations of the flow configuration in vicinity of immersed smooth and patterned* surfaces, to be published in Proc. Rom. Acad.



**Figura 7** Dispozitiv experimental construit pentru studiul calitativ al curgerii prin medii poroase (generate înte doi cilindrii aflați în mișcare relativă).

(iii) Tot în cadrul acestui proiect s-a studiat influența suprafețelor micro-structurate asupra fenomenului de focusare<sup>11</sup> în microcanele de tip cruce, Fig. 8.



**Figura 8** Fenomenul de focusare hidrodinamică în prezența vârtejului *vortex ring* : vizualizare și simulare numerică în prezența micro-structurilor.

(iv) Formarea vârtejurilor în cavitățile suprafețelor structurate s-a studiat numeric și experimental, Fig. 9 și Fig. 10. Aplicațiile sunt multiple, cu precădere în asociere cu procesul difuziei și transferul de masa în vecinătatea suprafețelor structurate imersate.



Dimensiune Profil	С	а	R = a/c	L	h	b
Tip A		5	0.5			
Tip B	10	10	1	110	20	15
Tip C		15	1.5			

Figura 9 Geometria testată și dimensiunile aferente exprimate în milimetrii.

Tip A – Experimental



Tip B – Experimental si numeric



Tip C – Experimental



**Figura 10** Vizualizări și simulări numerice ale formării vârtejurilor în cavitățile suprafețelor structurate (ulei siliconic:  $\rho = 1200 \text{ kg/m}^3$ ,  $\eta = 0.3 \text{ Pas}$ ;  $H_0 = 36 \text{ mm}$ , V = 0.006 m/s, L = 110 mm;  $Re \cong 2.7$ ).

25 Septembrie 2016

Director de proiect,

Smelin Jolan

Prof. Corneliu Bălan