

EL FENOMENO DE EYECCIÓN DE GOTAS: CASO DE UN FLUIDO MACROMOLECULAR

Marta Rosen y Bruno E. Basso*

* Académica Titular de la Academia Nacional de Ciencias Exactas, Físicas y Naturales
Laboratorio de Medios Porosos, Facultad de Ingeniería, UBA,
Paseo Colon 850, (1063) Buenos Aires, Argentina.
E-mail: mrosen@fi.uba.ar

Resumen

El tema de la formación de “spray” es de interés tanto industrial como desde el punto de vista de la física no lineal. Requiere un detallado conocimiento de las condiciones en que se forman las gotas del “spray” debido a la necesidad de controlar el tamaño de las mismas y las condiciones de eyección. El objeto de este trabajo experimental, es la caracterización del fenómeno de eyección de gotas de un fluido macromolecular. El polímero seleccionado POE, tiene la particular propiedad de reducción de la tensión superficial cuando se aumenta su concentración. Se analizó el proceso a partir de una capa líquida depositada en una celda vibrante. La aceleración a la cual se produce la eyección de gotas (umbral de eyección) se determinó para soluciones con diferentes concentraciones de POE y en un rango relativamente bajo de frecuencias. En particular, se analizó el comportamiento de las soluciones de Polioxietileno (POE) poniendo en evidencia la influencia de las propiedades reológicas del fluido en la etapa estudiada. Un aspecto de interés, es el control del tamaño de gota. Se puso en evidencia cuáles eran los factores físicos (viscosidad y/o tensión superficial) que pesan más en la respuesta de las soluciones estudiadas. Al mismo tiempo, se analizaron críticamente los modelos de eyección y tamaño de gota, de manera de poder identificar los factores que condicionan el comportamiento del polímero eyectado desde una celda vibrante.

Palabras clave: spray; celdas vibrantes; polímeros viscoelásticos; formación de gotas.

Abstract

Drop Ejection Phenomenon: the case of a macromolecular fluid. Spray formation is not only of industrial interest, it is also important from non linear physics perspective. It requires detailed knowledge of the droplets creation in order to control their size, as well as the ejection conditions. This experimental work addressed the macromolecular characterization of some fluids ejection phenomena. The fluids selected were Polyethylene (POE) liquid solutions, which exhibit decreasing surface tension with increasing concentration. Droplets production was investigated from a liquid layer laid on a vibrating cell; control parameters were acceleration and frequency. The acceleration which induces ejection was measured for solutions of different POE concentrations. Ejection threshold occurred at a relative low frequency range. Evidence was found out of the influence of the rheological properties on the ejection behavior and the resulting droplets size. The relative importance of physical properties, such as viscosity or surface tension, on liquid response was established.

Key words: spray; vibrating cells; viscoelastic polymers; droplet formation.

Introducción

La formación de “spray” obtenido a partir de una película líquida depositada en una celda vibrante, es un sistema empleado tanto en atomizadores ultrasónicos como en aplicaciones que van desde humidificadores hasta la manufactura de polvos metálicos.

Este tema, de interés industrial, requiere un detallado conocimiento de las condiciones en que se forman las gotas del “spray” debido a la necesidad de controlar el tamaño de las mismas y las condiciones de eyección.

Cuando se trata de producir gotas con fluidos complejos (como por ejemplo el caso de soluciones poliméricas), la influencia de sus propiedades reológicas en la formación de las mismas, es un tema importante y aun abierto debido al comportamiento diferente de cada uno de estos líquidos dependiendo de su peso molecular, concentración y solvente seleccionado, así como temperatura y presión. Por lo tanto, entre los factores a considerar debe incluirse el conocimiento de su microestructura para comprender la manera en que estos fluidos responden en el momento de producirse la eyección.

Los polímeros solubles en agua, son utilizados como agentes de control, de procesos de filtración, como estabilizantes, etc. También se emplean para modificar los umbrales de ruptura cuando son usados en “jet printing”, pintura de automóviles (como dispersante de pigmentos), agente para pulverización en agricultura, floculante, etc. [1] o como agente de reducción del arrastre en mezclas [2].

El polímero seleccionado para este trabajo, POE (PEO en inglés, Polyethyleneoxide) tiene baja inflamabilidad y baja presión de vapor, es biodegradable, bio-compatible y no tóxico. Para este polímero, por lo tanto, el agua resulta un buen solvente a bajas concentraciones, pero a altas concentraciones no tiene tan buena respuesta debido a los cambios en las interacciones de las uniones hidrogeno del agua con las moléculas de POE.

La particular propiedad de reducción de la tensión superficial cuando se aumenta la concentración del polímero, así como la poca dependencia de esta propiedad física con el peso molecular le dan a este fluido complejo una característica muy interesante que se debe considerar cuando se quieren estudiar y controlar los mecanismos de eyección de gotas [3,4].

Las propiedades de la respuesta de una capa de fluido colocada en una celda vibrante ha despertado desde hace años el interés de físicos e ingenieros. Así, desde los pioneros trabajos de Faraday [5] en 1831 hasta los importantes aportes del análisis no lineal [6, 7] permitieron comprender los fenómenos que se presentan a medida que los parámetros de control del sistema (frecuencia y aceleración) se van modificando.

En este sistema, antes de la formación y eyección de la gota, a una frecuencia (f) y aceleración (a) definidas (a medida que estos parámetros se van aumentando), aparecen ondas estacionarias sobre la superficie del líquido. A medida que se sigue aumentando la frecuencia de excitación, la superficie se desordena hasta llegar a un umbral a partir del cual se inicia la eyección de gotas [8,9].

En la Figura 1, se muestran los esquemas realizados por Plateau, quien en 1849 estudio detalladamente el proceso de formación de gotas en el caso del rompimiento de una columna de aceite suspendida en una mezcla de alcohol y agua [10].

Más adelante, Rayleigh [11], siguió analizando este proceso y agregó, a la descripción de la dinámica del mismo, la consideración del papel que cumple la tensión superficial que debe competir con las fuerzas de inercia para permitir la formación de gotas.

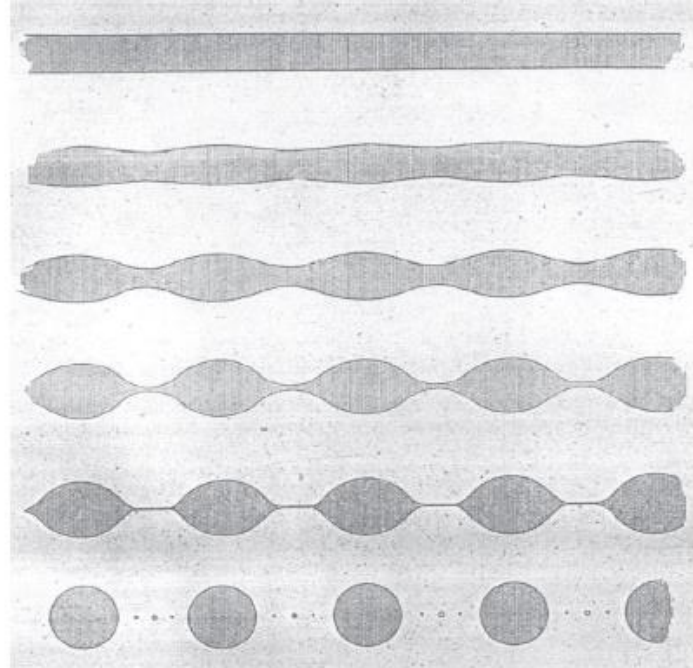


Fig. 1. Rompimiento de una columna de aceite suspendida en una mezcla de alcohol y agua. De arriba hacia abajo, se muestra la evolución de una pequeña perturbación hasta la ruptura final donde se observan tres pequeñas gotas satélite.

Sistema experimental

El sistema experimental empleado en este trabajo, fue descrito en detalle en publicaciones previas [9]. En la Figura 2, se presentan los diferentes componentes del mismo: la señal producida en el generador digital, es amplificada hasta excitar un transductor electromecánico que está rígidamente conectado mediante una barra de aluminio a la celda que contiene la muestra y que, a su vez, se monitorea desde un osciloscopio. El sistema de iluminación se fue ajustando de acuerdo a las necesidades de obtención de la imagen. La cámara empleada permite obtener hasta 7000 fps (cámara LUMERA-LU125) con tecnología CCD, con una resolución de 72 x 8 píxel. Para la adquisición de imágenes, se empleó una lente NIKON de 50 mm. Sobre las imágenes obtenidas se aplicó un tratamiento adaptado a cada experimento. El equipo permite trabajar entre 0 y 600 Hz sin distorsión de la señal.

Propiedades del fluido empleado

Se emplearon soluciones de POE de Mw 8.106, variando las concentraciones en el solvente acuoso entre 100 y 1500ppm. En todos los casos se determinó la viscosidad en función de la velocidad de corte empleando un reómetro Physica MCR300. También se midió la tensión superficial para cada una de las soluciones empleadas. Se pudo observar que esta disminuye al aumentar la concentración de POE.

En las Figuras 3 y 4 se presentan las propiedades medidas. En particular, las mediciones reológicas, permitieron evidenciar el comportamiento “shear thinning” (pseudoplástico) de estas soluciones. En la Figura 4, se ha superpuesto una línea superior que

corresponde a los datos obtenidos por Mahn Won Kim [12] para POE con Mw 8500, mientras que la inferior corresponde a nuestros datos experimentales. Podemos así observar, que el peso molecular no es muy importante en la tensión superficial.

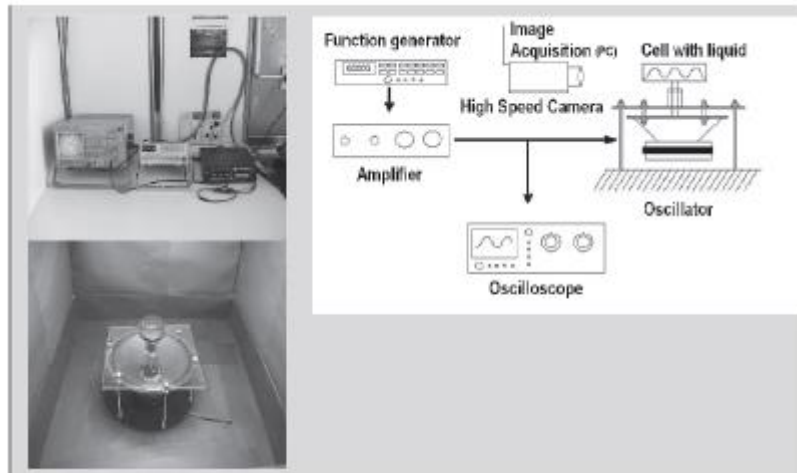


Fig. 2. Esquema del sistema experimental y fotografía del mismo. Todas las experiencias se realizaron a temperatura constante, 23C.

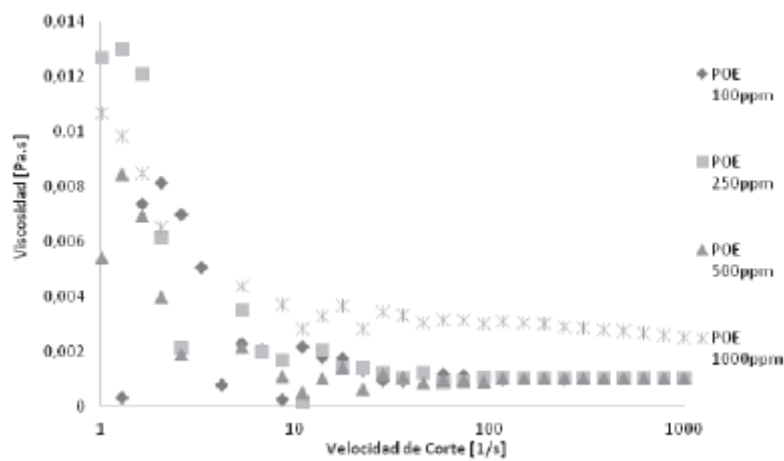


Fig. 3. Mediciones reológicas de las distintas concentraciones de las soluciones de POE.

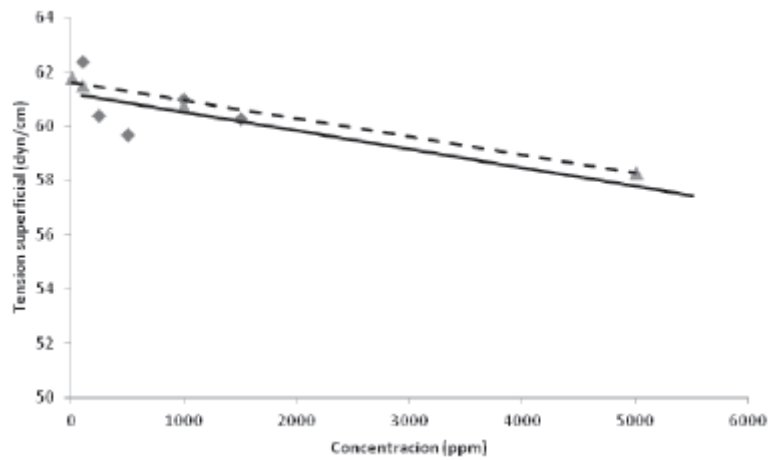


Fig. 4. Resultados de la medición de tensión superficial para las diferentes concentraciones de POE.

Por otra parte, para poner en evidencia las propiedades dinámicas del fluido, se midieron los módulos de almacenamiento o modulo elástico (G') y el módulo de pérdida (G'') o componente viscosa para cada concentración. En la Figura 5 se presentan los datos obtenidos para una concentración de 1500 ppm. A partir de 20 Hz, se observa el predominio de las propiedades elásticas, y ese rango (por encima de 20 Hz) es nuestro rango de trabajo. Este resultado es concordante con lo observado por Ebagninin [13] en su trabajo sobre la reología de las soluciones de POE de diferentes pesos moleculares. Por lo tanto, en el comportamiento de este polímero, las propiedades elásticas no pueden ser despreciadas.

Aceleración crítica

La aceleración a la cual se produce la eyección de gotas (umbral de eyección) se determinó para soluciones con diferentes concentraciones de POE y en un rango de frecuencias de 0 a 200Hz. Para identificar el umbral, a una frecuencia fija, se aumentó gradualmente la aceleración hasta el momento de la eyección de una o dos gotas en un intervalo de tiempo de 10s. En la Figura 6 se puede observar el momento en que se produce el umbral de eyección y en la Figura 7 los resultados obtenidos para cuatro concentraciones de POE.

La aceleración crítica necesaria para que se produzca la eyección tiende a disminuir a medida que aumenta la concentración. Esto se debe a la influencia de la concentración de POE en la tensión superficial que (Figura 4) disminuye a medida que aumenta la concentración.

En el trabajo de Goodridge [14] para fluidos Newtonianos, se establece un criterio que permite escalar las aceleraciones críticas, correlacionando el umbral de eyección con las variables intrínsecas al fluido, lo que permite identificar cuál de ellas tiene mayor peso (viscosidad η o tensión superficial σ) en el fenómeno de eyección.

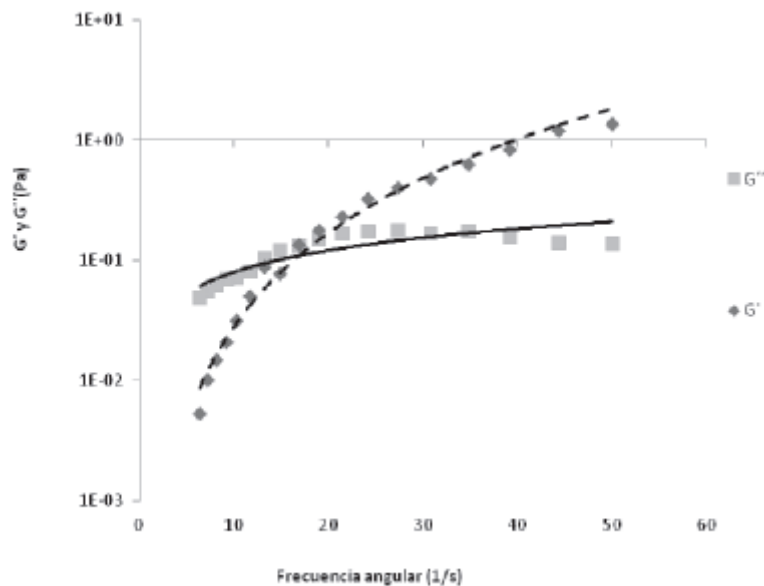


Fig. 5. Propiedades dinámicas de una solución de POE de 1500 ppm.

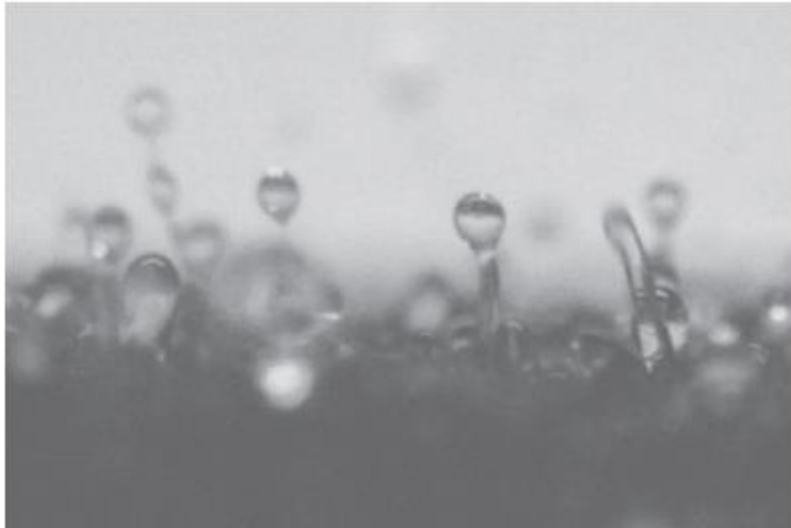


Fig. 6. Umbral de eyección de POE 250ppm, f=80Hz y a=4,2g.

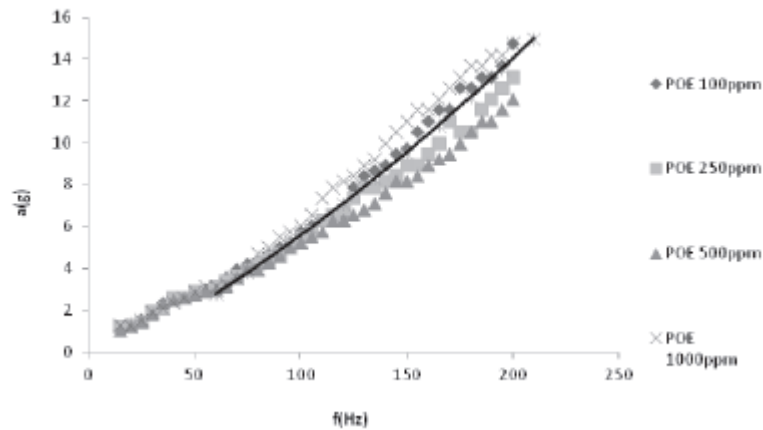


Fig. 7. Umbrales de eyección para distintas concentraciones de POE. La aceleración esta medida en unidades de g (aceleración de la gravedad) en función de la frecuencia aplicada.

A partir de la relación de dispersión (ec. 1) relativa a la formación de ondas de pequeña amplitud en la superficie de un líquido, estando presentes tanto los efectos gravitatorios como los capilares,

$$\omega = \kappa g + \frac{\sigma}{\rho} \kappa^3 \quad \text{ec. 1}$$

donde k es el número de onda y g la aceleración de la gravedad, Godridge obtiene una relación para la frecuencia crítica:

$$\omega_c = g^{3/4} \left(\frac{\rho}{\sigma} \right)^{1/4} \quad \text{ec. 2}$$

Donde ρ la densidad del fluido. Entonces, es posible obtener una expresión de la aceleración crítica cuando la tensión superficial es el efecto dominante:

$$\alpha_c \approx \omega^{4/3} \left(\frac{\sigma}{\rho} \right)^{1/3} \quad \text{ec. 3}$$

Esta relación esta superpuesta en línea punteada sobre los resultados experimentales en la Figura 7.

En cambio, cuando predominan los efectos viscosos, se obtiene:

$$\alpha_c \approx \nu^{3/2} \omega^{3/2} \quad \text{ec. 4}$$

Realizando un cambio de variables es posible obtener aceleraciones y frecuencias adimensionales,

$$\alpha^* = \frac{\alpha \nu^4}{\left(\frac{\sigma}{\rho} \right)^3} \quad \text{y} \quad \omega^* = \frac{\omega \nu^3}{\left(\frac{\sigma}{\rho} \right)^2} \quad \text{ec. 5 y 6}$$

Así, dependiendo de los valores de w^* se identifica la influencia dominante en el proceso de eyección: si $w^* \geq 10^{-5}$ la viscosidad es dominante, si $w^* \leq 10^{-5}$, la tensión superficial domina el proceso.

En la Figura 8 se presentan los resultados correspondientes a la aceleración en función de la frecuencia adimensionalizadas, teniendo como parámetro la concentración.

Como se puede observar para concentraciones menores a 1000ppm las frecuencias adimensionalizadas son menores al límite en el cual los efectos de la viscosidad se tornan importantes. En el caso de 1000ppm estamos cerca de ese valor límite (10^{-5}) pero ya se puede afirmar que el peso de la viscosidad resulta ser el factor predominante.

Para el caso de 1000ppm la aceleración crítica presenta valores superiores a los del resto de las soluciones.

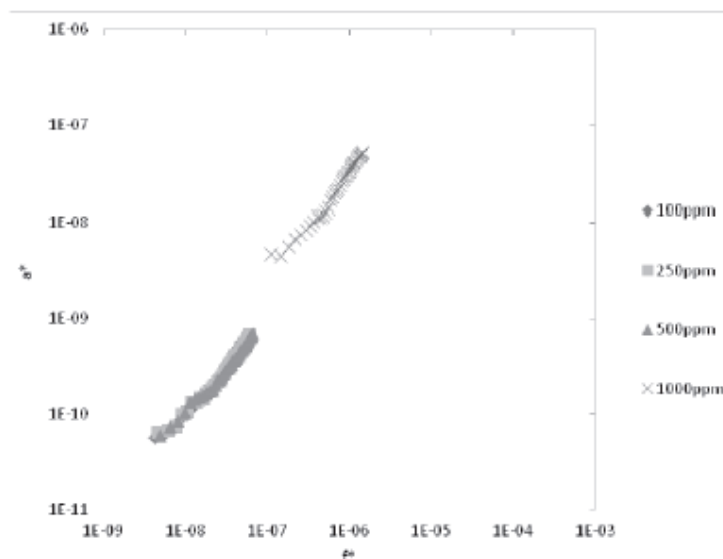


Fig. 8. Aceleración en función de la frecuencia

Modos de eyección

Cuando la energía aplicada es suficiente para vencer la tensión superficial, en general se crea un pico que se eleva sobre la superficie del líquido, y sobre este se desarrolla un cuello [15, 16]. Este evoluciona sometido a la influencia de la propagación de oscilaciones a lo largo del pico, hasta dar lugar a la formación de una gota que tiene la suficiente energía cinética como para elevarse por encima del pico Yule [17].

En la Figura 9 se muestra un modo ideal de eyección de gotas desde una superficie líquida (eyección y retroceso). A partir de este modelo idealizado, se desarrollaron los modelos físicos iniciales que permitieron explicar el fenómeno [18]. Este es el modo que pudo observarse con mayor frecuencia en nuestras experiencias. En el caso de fluidos con propiedades viscoelásticas, en general no se rompe el “cuello” y la gota formada queda transitoriamente vinculada al pico, presentando una “cola” sobre la que se van formando gotas satélites con una distancia entre si correspondiente a longitudes de onda definidas. Tirtaatmadja [19] interpreta la aparición de estas gotas satélites, como el pasaje desde un balance inicial de fuerzas *inercio-capilares* donde las moléculas mantienen su estructura hasta que la aceleración del pico lleva a la consiguiente aparición de fuerzas inerciales con el pasaje a un régimen *elasto-capilar en el* que cerca del “cuello” las moléculas comienzan a sufrir un estiramiento formando los característicos hilos elásticos. En estos casos, también pueden aparecer mecanismos que dan lugar a “cuellos” múltiples y simultáneos formados sobre el mismo pico Figuras 12, 13 y 14. Este comportamiento es debido a las propiedades elásticas del polímero.

En las experiencias realizadas con las soluciones de POE, hemos observado también, un modo denominado “volcán”, en el cual, las gotas son expulsadas directamente desde la superficie del fluido sin la previa formación de un pico. Sobre la superficie se genera una depresión o cráter, del que gradualmente se expulsa la gota. Generalmente estas no alcanzan una altura elevada y su aparición está vinculada a las interacciones con los otros modos cercanos que perturban toda la superficie.

El esquema mostrado corresponde al mismo trabajo de Yule [17], Figura 10.

En las Figuras 11, 12, 13, 14 y 15 se presentan las imágenes correspondientes a algunas secuencias de eyección.

Tamaños de gota

Como se indicó en la primera sección, el tamaño de las gotas que se eyectan de los picos generados en la superficie, depende tanto de las propiedades del fluido que es excitado como de las características de la excitación que se le aplica.

Lang [18], suponiendo que por cada pico se eyecta una sola gota sin sufrir una depresión en el momento de eyección, relacionó la longitud de onda entre capilares sobre la superficie del líquido, con las propiedades del sistema y la frecuencia aplicada, y propuso una relación en la que el diámetro de las gotas que conforman el “spray” resultan ser una fracción de la longitud de onda Figura 16.

Así, obtiene la relación

Así, obtiene la relación

$$d = 0.34 \lambda_{Lang} \quad \text{ec. 7}$$

donde

$$\lambda_{Lang} = \left(\frac{8\pi\sigma}{\rho f^2} \right)^{1/3}$$

como se ve, en esta relación la viscosidad no está considerada.

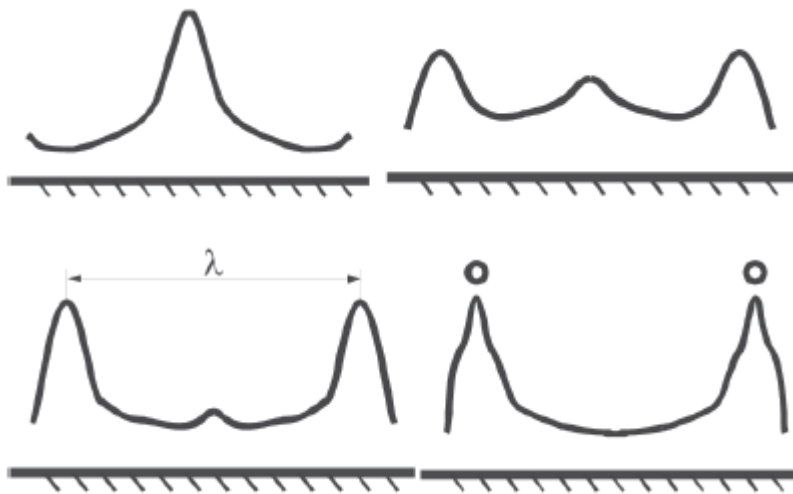


Fig. 9. Esquema de un posible mecanismo de eyección.

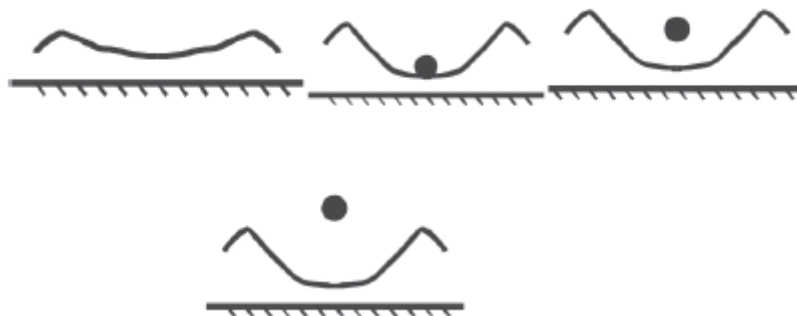


Fig. 10. Esquema de una eyección tipo "volcán" [17].



Fig. 11. Eyección de gota desde el pico para POE 250ppm, tiempo entre imágenes 0,025s, $f=40\text{Hz}$, $a=2.6g$.

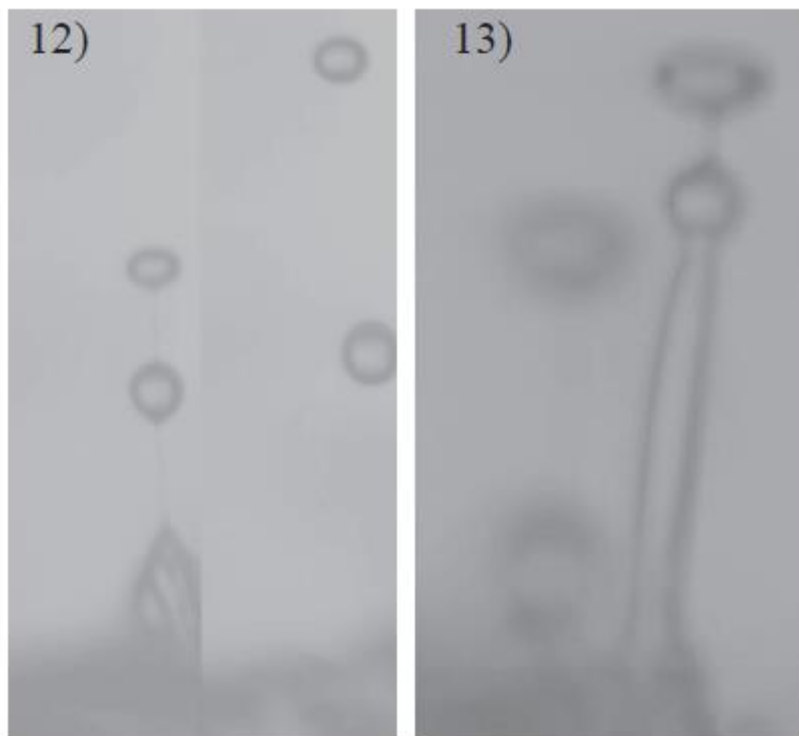


Fig. 12. Eyección de gota desde un pico con satélites, POE 250ppm, tiempo entre imágenes 0,014s. $f=110\text{Hz}$, $a=6,3g$. Fig. 13. Eyección de gota con satélite desde el pico de POE 500ppm, tiempo entre imágenes 0,014s. $f=90\text{Hz}$, $a=4,6g$.



Fig. 14. Eyección producida a través de cuellos múltiples para una solución de 500ppm, $f=110\text{H}$, $a=5,8g$.



Fig. 15. Eyección de gota en el modo "volcán" POE 500ppm, $f=70\text{Hz}$, $a=3,5g$, tiempo entre imágenes 0,014s.

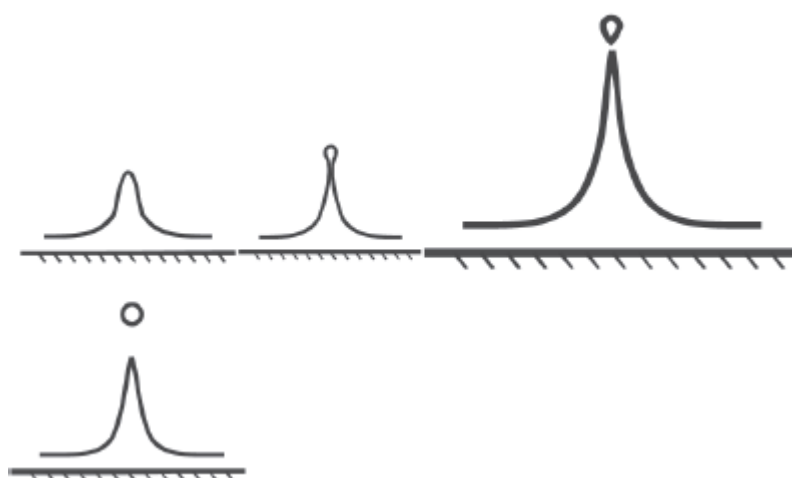


Fig. 16. Esquema propuesto por Lang [18] para la estimación del tamaño de gota.

En nuestro trabajo, se midieron los diámetros medios (d_{10}) de gotas producidas, en un rango de frecuencia entre 0 y 300Hz y para soluciones con diferentes concentraciones de POE. En la Figura 17 se presentan los resultados experimentales de los diámetros medidos en función de la frecuencia aplicada. La línea superior corresponde a la relación propuesta por Lang.

Los resultados, evidencian la limitación principal del modelo de Lang al no haber considerado la viscosidad. Cuando se superponen nuestros resultados con los teóricos que se obtendrían aplicando el modelo de Lang para la concentración de 500ppm, se puede observar que estos quedan por encima de los valores experimentales. En línea llena se grafica el diámetro teórico de Lang con una constante de 0,22 en lugar de 0,34 en la ecuación 7. En este caso los diámetros medidos y los teóricos tienen un mejor ajuste.

En trabajos posteriores [19], se formula una nueva relación que incluye la viscosidad del fluido. La expresión propuesta para los diámetros de las gotas es:

$$D_{s,3.2} = Cte \frac{\sigma^3}{\rho \mu^2 f^4}$$

Donde se ha empleado la definición de Diámetro medio de Sauter ($D_{s,3.2}$), que corresponde al diámetro de una partícula hipotética que tiene igual cociente volumen/área superficial que la partícula del interés ($D_{3.2}$). En esta expresión se tiene en cuenta tanto la tensión superficial como la viscosidad.

Normalmente, para estos sistemas, se emplea un número adimensional denominado de Ohnesorge (Oh). Este número está definido como la relación entre el número de Weber (We) y el número de Reynolds (Re).

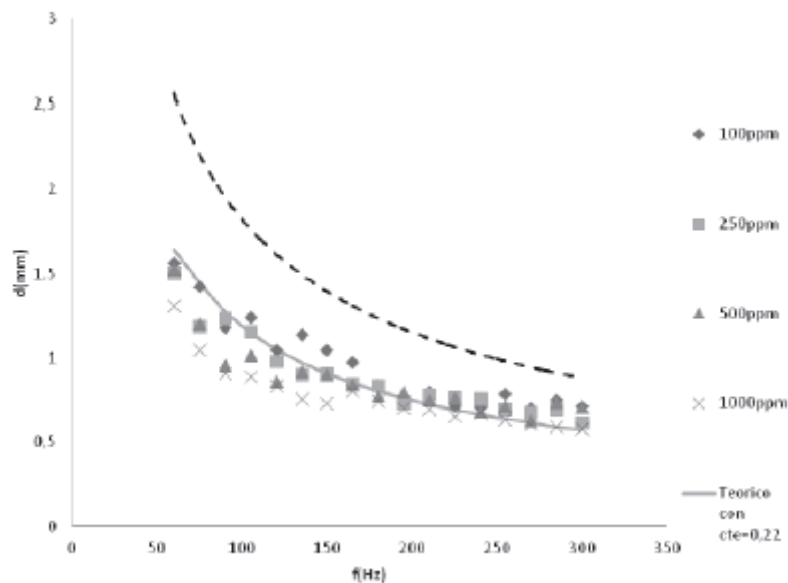


Fig. 17. Diámetros de gotas para distintas concentraciones de POE en función de la frecuencia aplicada.

Teniendo en cuenta sus definiciones:

$$We = \frac{\rho D v^2}{\sigma} \quad y \quad Re = \frac{\rho D v^2}{\mu}$$

El numero Oh es definido como

$$Oh = \frac{\sqrt{We}}{Re} = \frac{\mu}{\sqrt{\rho D \sigma}}$$

En el caso de utilizarse el $D_{3,2}$ se obtendría el $Oh_{3,2}$. Pero, si se adimensionaliza su definición [16], con la frecuencia de excitación de la forma

$$f^* = \frac{f \mu^3}{\sigma^2 \rho}$$

Se obtiene la expresión final

$$Oh = cte (f^*)^{\frac{2}{5}}$$

representada en la Figura 18 donde se ha superpuesto la recta correspondientes al ajuste igual a 3 para la constante.

En todos los casos la potencia $2/5$ resulta corresponder al mejor ajuste. Este valor deriva de haber realizado un balance entre la energía aplicada y la superficial.

En cuanto a la influencia de la concentración en la distribución de diámetros, la solución de mayor contenido de POE (1000ppm) presenta menor dispersión de tamaños, siendo además menores que a concentraciones más bajas.

Esto indica que el agregado de POE ayuda a la homogenización de los tamaños de las gotas que se eyectan desde los picos.

Conclusiones

En este trabajo se analizan las características físicas que presenta el fenómeno de eyección de gotas desde una celda vibrante. Se han expuesto las propiedades particulares vinculadas al sistema de eyección, y otras más generales, que tienen que ver con la formación de gotas que es un complejo fenómeno no-lineal.

En particular, se analizó el comportamiento de soluciones de Polyoxietileno (POE) poniendo en evidencia la influencia de las propiedades reológicas del fluido en la etapa estudiada.

Se presentó la determinación del umbral crítico (aceleración y frecuencia) para el cual se produce la eyección de gotas, verificando, que a medida que aumenta la frecuencia de la excitación aplicada, la aceleración para que se produzca la eyección de gotas también debe aumentar.

Un aspecto de interés industrial, es el control del tamaño de gota. Entonces es necesario conocer que factores físicos (viscosidad y o tensión superficial) pesan mas en la respuesta de las soluciones estudiadas. En este caso, para las concentraciones entre 100ppm y 500ppm el efecto que domina la eyección es la tensión superficial.

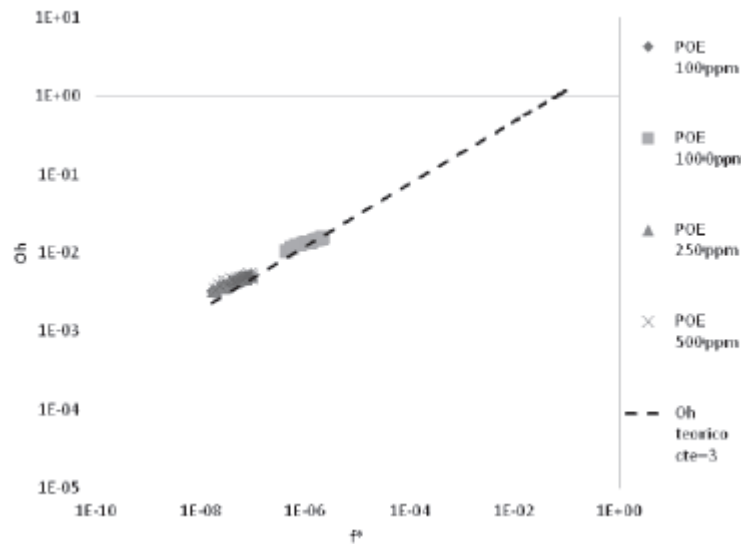


Fig. 18. Oh en función de f^* para todas las concentraciones estudiadas y ajuste del modelo con una constante igual a 3.

Se verificó la tendencia a obtener tamaños de gotas más pequeños a medida que se aumenta la frecuencia de la excitación aplicada.

Se analizaron críticamente los modelos de eyección y tamaño de gota, de manera de poder identificar los factores físicos que condicionan el comportamiento de un líquido macromolecular eyectado desde una celda vibrante.

Referencias

- [1] Z. Ergungor, J-M. Smolinski, C.W. Manke & E. Gulari. *J.Non Newtonian Fluid Mech.* **138** 1 (2006).
- [2] N.S. Berman, R.B. Berger & J.R. Leis, *J. Rheol.* **24**, 571 (1980).
- [3] M. Boukra, A. Cartellier, É. Ducasse , P. Gajan , M. Lalo, T. Noel, & A. Strzelecki, *C. R. Mecanique* **337**, 492 (2009).
- [4] A.J. James, M.K. Smith & A. Glezer, *J. Fluid Mech.* **476**, 29 (2002).
- [5] M. Faraday, *Philos.Trans. R. Soc. London*, **121**, 319 (1831).
- [6] T.B. Benjamin & F. Ursell, *Proc. R. Soc. Lond. A*, **225**, 505 (1954).
- [7] E. Cerda & E. Tirapegui, *Phys. Rev.* **78**, 5 (1997).
- [8] N.B. Tuffillaro, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 422 (1988).
- [9] C. Cabeza , M. Rosen, G. Ferreyra & G. Bongiovanni, *Physica A* **371**, 54 (2006).
- [10] J. Plateau, *Acad. Sci. Bruxelles Mem.* **XXIII** , 5 (1849).
- [11] Lord Rayleigh, *Proc. London Math. Soc.* **10**, 4 (1879).

- [12] M.W. Kim, *Colloids Surfaces A* **128**, 145 (1996).
- [13] K.W. Ebaginin, A. Benchabane & K. Bekkour, *J. Colloid Interf. Sci.* **336**, 360 (2009).
- [14] L.C. Goodridge, W. Tao Shi & D.P. Lathrop, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1824 (1996).
- [15] B. Vukasinovic, M.K. Smith & A. Glezer, *Physics of Fluids* **19**, 012104 (2007).
- [16] S. Lustig & M. Rosen. *J. Phys.: Conference Series (JPCS)* **296**, 012019 (2011).
- [17] A.J. Yule & Y. Al-Suleimani, *Proc. R. Soc. London A* **456**, 1069 (2000).
- [18] R. Lang, *J. Acoust. Soc. Amer.* **34**, 6 (1962).
- [19] V. Tirtaatmadja, G.H. McKinley & J.J. Cooper-White, Dept. of Mech. Engineering, MIT, HML Report Number **06-P-03** (2006).

Manuscrito recibido el 30 de marzo de 2012.

Aceptado el 20 de abril de 2012.