



## HIDRODINÂMICA E REOLOGIA DE EMULSÕES DILUÍDAS COM ALTAS RAZÕES DE VISCOSIDADE

Francisco Ricardo Cunha

Ronne Toledo

Universidade de Brasília, Departamento de Engenharia Mecânica-FT

Campus Universitário, 70910-900 - Brasília, DF, Brasil

Michael Loewenberg

Yale University, Department of Chemical Engineering

New Haven, CT, 06520-8286, USA

*Resumo.* A teoria de pequenas deformações é aplicada ao estudo da reologia de uma emulsão diluída sujeita a altas taxas de cisalhamento. O presente artigo mostra a ligação da macro-reologia da emulsão com a deformação e orientação das partículas fluidas que compõem a fase dispersa (micro-mecânica). A teoria é comparada com resultados de simulações numéricas em altas razões de viscosidade. Uma importante conclusão do presente trabalho é que uma emulsão diluída composta por partículas de altas viscosidades exhibe shear thinning e comportamento elástico em moderadas taxas de cisalhamento.

*Palavras-chave:* Reologia, Emulsão Diluída, Deformação

### 1. INTRODUÇÃO

Uma emulsão é definida como sendo uma mistura de partículas de um fluido dispersas em uma fase contínua de outro fluido. Uma questão básica é entender como a deformação e a orientação das partículas afetam a macroreologia da emulsão, produzindo efeitos elásticos no escoamento. Emulsões estão presentes, por exemplo, na indústria de alimentos e cosméticos e em sistemas de recuperação terciária de petróleo. Além disso o comportamento dinâmico de *drops* em emulsão pode ser usado como base para o estudo do movimento de glóbulos vermelhos e outras células biológicas em microvasos e capilares.

O primeiro cálculo de suspensões depois de Einstein (1906) foi desenvolvido por Taylor (1932), que determinou a viscosidade efetiva e calculou estados de pequena deformação de emulsões diluídas de partículas fluidas com alta tensão superficial. Dois anos mais tarde, Taylor (1934) realizou experimentos com objetivo de visualizar deformações de partículas em escoamentos cisalhantes. Uma série de análises teóricas foram desenvolvidas para estender os resultados de Taylor aos casos envolvendo maiores deformações de

partícula e emulsões menos diluídas. Os estudos mais relevantes para o presente trabalho foram baseados no artigo de Schowalter, Chaffey e Brenner (1968), sobre o efeito da deformação de uma partícula fluida na reologia de uma suspensão diluída de dois fluidos Newtonianos, na extensão desse trabalho para uma situação mais geral de deformação por Frankel e Acrivos (1973) e nas análises assintóticas propostas por Cox (1969), Barthès-Biesel e Acrivos (1973). Uma unificação dessas análises foi proposta por Rallison (1980). O principal objetivo do presente trabalho é desenvolver uma teoria que seja aplicada ao estudo da reologia de emulsões diluídas com altas razões de viscosidades fluido-partícula, sujeitas a altas taxas de cisalhamento. São dois os parâmetros adimensionais relevantes do problema: (i) o número de capilaridade,  $Ca = \mu\dot{\gamma}a/\sigma_o$ , que é uma medida da razão da intensidade da força do escoamento externo que tende a deformar a partícula,  $F_e \sim \mu a^2 \dot{\gamma}$ , pela força restauradora de tensão superficial,  $F_r \sim a\sigma_o$ ; e (ii) a razão de viscosidade fluido-partícula  $\lambda = \mu'/\mu$ .

## 2. FORMULAÇÃO DO PROBLEMA

A presente análise trata do estudo de uma emulsão consistindo de partículas fluidas idênticas de viscosidade  $\mu'$  e densidade  $\rho'$ , suspensas em baixas concentrações em um fluido Newtoniano incompressível de viscosidade  $\mu$  e densidade  $\rho$ . Para baixas concentrações,  $\phi$ , a tensão extra produzida no escoamento pela deformação das partículas pode ser calculada com um erro  $O(\phi^2)$  como a superposição dos *stresslets* de cada partícula isolada, desprezando-se os efeitos de interações hidrodinâmicas entre as mesmas. A emulsão é sujeita a um escoamento cisalhante linear  $\mathbf{u}^\infty = (\dot{\gamma}y, 0, 0)$ .

Na formulação a seguir, comprimentos são adimensionalizados usando-se o raio inicial da partícula,  $a$ , enquanto, para adimensionalização de tempo utiliza-se o tempo de relaxação da tensão superficial,  $\tau = \mu a/\sigma_o$ . Velocidade e pressão são adimensionalizadas, respectivamente, com as escalas  $\sigma_o/\mu$  e  $\sigma_o/a$ . Desde que uma deformação de primeira ordem implica numa correção de segunda ordem na forma das partículas em tempos subsequentes, a equação Lagrangiana da superfície esférica perturbada pode ser escrita em termos adimensionais como:

$$S_i(\mathbf{x}, t) = r(t) - 1 - \frac{\mathbf{x} \cdot \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{x}}{r^2} - \dots = 0. \quad (1)$$

Consequentemente, a curvatura média adimensional  $\kappa$  num ponto da superfície é dada por

$$\kappa = \nabla_s \cdot \mathbf{n} = 2[1 + 2\mathbf{n} \cdot \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{n} + \dots]. \quad (2)$$

Em que  $r = |\mathbf{x}|$  e  $\mathbf{n}$  é o vetor normal unitário à superfície. Defini-se  $\mathbf{A}$  como sendo o tensor distorção da partícula. Os autovalores de  $\mathbf{A}$  caracterizam as deformações principais da partícula, enquanto a base de autovetores define as direções principais de deformação. No sentido de se preservar o volume da partícula  $\mathbf{A} : \mathbf{I} = 0$ . Aqui,  $\mathbf{I}$  é o tensor identidade e  $\nabla_s = (\mathbf{I} - \mathbf{nn}) \cdot \nabla$  é o operador gradiente tangente à interface fluido-partícula. A determinação de  $S_i(t)$  é possível conhecendo-se a distribuição de velocidade  $\mathbf{u}^s$  na superfície da partícula e aplicando-se a condição de contorno cinemática

$$\frac{dS_i(t)}{dt} = 0. \quad (3)$$

## 2.1. Hidrodinâmica do escoamento macroscópico

Em problemas típicos de escoamentos bifásicos particulados envolvendo partículas ou bolhas da ordem de milímetros existe movimento relativo entre as fases, requerendo equações do movimento diferentes para cada fase. No presente contexto, no entanto, utiliza-se a teoria de suspensões descrita por Batchelor (1976) que, em geral, propõem uma única equação para descrever o escoamento médio da emulsão no qual o efeito das partículas é levado em consideração nas propriedades reológicas desse material.

Considerando-se que o comprimento característico  $L$  do escoamento macroscópico é muito maior do que o tamanho  $a$  da partícula, pode-se pensar numa descrição contínua do campo de escoamento sendo governado pela equação

$$Re \left( \frac{D\langle \mathbf{u} \rangle}{dt} \right) = \nabla \cdot \langle \underline{\sigma}^{emul} \rangle, \quad \nabla \cdot \langle \mathbf{u} \rangle = 0, \quad (4)$$

em que  $Re = \dot{\gamma}L^2/\nu$  é o número de Reynolds macroscópico e  $\langle \underline{\sigma}^{emul} \rangle$  é o tensor de tensões médio do escoamento da emulsão, em geral, avaliado por meio de simulação numérica da micro-estrutura de emulsões concentradas (Loewenberg & Hinch, 1996). No presente trabalho o principal objetivo é calcular esse tensor para uma emulsão diluída de altas razões de viscosidade ( $\lambda \gg 1$ ) e sujeita a altas taxas de cisalhamento ( $Ca \gg 1$ ). Geralmente,  $\langle \underline{\sigma}^{emul} \rangle$  é não-linear, dependendo da deformação e da orientação das partículas no escoamento. De acordo com Landau & Lifshitz (1987) e Batchelor (1970):  $\langle \underline{\sigma}^{emul} \rangle = \langle p \rangle \mathbf{I} + 2\mu \langle \mathbf{E} \rangle + n \langle \underline{\sigma}^p \rangle$ . Os dois primeiros termos do lado direito da equação definem a contribuição ao tensor de tensão médio da emulsão, devido à fase contínua fluida, com taxa de deformação média e pressão média definidas por  $\langle \mathbf{E} \rangle$  e  $\langle p \rangle$ , respectivamente. Aqui,  $n = N/V$  é o número de densidade de partículas na emulsão,  $N$  o número total de partículas,  $V$  o volume total da emulsão e

$$\langle \underline{\sigma}^p \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \int_{S_i} \{ \mathbf{x} [[\underline{\sigma} \cdot \mathbf{n}]]^s + \mu(\lambda - 1)(\mathbf{u}\mathbf{n} + \mathbf{n}\mathbf{u}) \} dS(\mathbf{x}), \quad (5)$$

é a contribuição da fase dispersa para o tensor de tensões da emulsão devido à força dipolar (*stresslet*) que cada partícula livre de torque produz no escoamento (Cunha 1997).  $S_i$  é a superfície da partícula  $i$ , com vetor unitário normal  $\mathbf{n}$ , e  $[[\underline{\sigma} \cdot \mathbf{n}]]^s$  é o salto de tração na interface fluido-fluido, que será discutido ao longo deste artigo.

A microhidrodinâmica do escoamento,  $\mathbf{u}$ , é tratada em baixo número de Reynolds de partícula, com  $Re_p = Re(a/L)^2 \ll 1$  e considera-se que o fluido se ajusta instantaneamente as mudanças no contorno, devido à rápida difusão de vorticidade;  $a^2/\nu \ll O(a\mu/\sigma_o)$ . Desta maneira, o problema de deformação é governado a cada instante pelas equações de Stokes em regime quasi-permanente:  $\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \forall \mathbf{x}$  e  $\nabla \cdot \underline{\sigma} = 0$  para  $\mathbf{x} \notin S_i$ , em que

$$\underline{\sigma} = \begin{cases} -P\mathbf{I} + \mu(\nabla\mathbf{u} + \nabla\mathbf{u}^T) & \text{se } \mathbf{x} \in V, \\ -P\mathbf{I} + \lambda\mu(\nabla\mathbf{u} + \nabla\mathbf{u}^T) & \text{se } \mathbf{x} \in V'. \end{cases} \quad (6)$$

$P = p - \rho\mathbf{g} \cdot \mathbf{x}$  é a pressão modificada pelo efeito da gravidade.

## 2.2. Condições de contorno

As condições de contorno do escoamento requerem além de um campo de velocidade imposto no infinito, a continuidade de velocidade e um balanço entre a tração líquida superficial e a força de tensão superficial, na interface fluido-fluido  $S_i$ . Matematicamente, isto pode ser postulado na forma:  $\mathbf{u} \rightarrow \mathbf{u}^\infty \quad |\mathbf{x}| \rightarrow \infty; \quad \mathbf{u}(\mathbf{x}) = \mathbf{u}'(\mathbf{x}), \quad \mathbf{x} = \mathbf{x}_s \in S_i$ .

O estudo em questão considera uma emulsão caracterizada por pequenos números de Marangoni,  $Ma = \Delta\sigma_o/Ca \ll 1$ . Isto significa que, o tempo para deformação é muito maior que o tempo de equilíbrio da distribuição de tensoativos na superfície da partícula, podendo-se, então, desprezar-se o efeito elástico nas interfaces fluido-fluido imposto pela presença de impurezas. Considera-se, também, o caso de uma emulsão livre do efeito líquido da gravidade (i.e. baixos números de Bond,  $Bo = \Delta\rho a^2 g/\sigma_o \ll 1$ ). Nestas condições o salto de tensões  $[[\underline{\sigma} \cdot \mathbf{n}]]^s$  reduz-se a:

$$[[\underline{\sigma} \cdot \mathbf{n}]]^s = \kappa\sigma_o\mathbf{n}, \quad \text{para} \quad \mathbf{x} = \mathbf{x}_s \in S_i. \quad (7)$$

## 3. MÉTODO DE SOLUÇÃO DA HIDRODINÂMICA

O objetivo principal desta seção é determinar a distorção  $\mathbf{A}$  de primeira ordem da superfície da partícula, produzida pelo segundo harmônico  $\mathbf{E} = (\dot{\gamma}/2)(\mathbf{ij} + \mathbf{ji})$ . A solução da hidrodinâmica do problema de pequenas deformações pode ser determinada a partir da solução geral de Lamb (1932) das equações de Stokes em coordenadas esféricas.

### 3.1. Solução assintótica para altas razões de viscosidade

Baseando-se na análise desenvolvida por Frankel & Acrivos (1973) e Rallison (1980), verifica-se que se  $Ca$  é  $O(1)$ , mas  $\lambda \gg 1$ , o tensor distorção é da ordem  $O(1/\lambda)$ , que tende a zero no limite de partículas com viscosidades muito maiores do que a do solvente. Nesta condição limite de partículas com alta viscosidade é apropriado redefinir o número de capilaridade em termos da viscosidade da partícula, isto é  $\hat{Ca} = \lambda\mu\dot{\gamma}/\sigma_o = \lambda Ca$ . É importante notar que o número de capilaridade mede a razão entre as duas escalas de tempo relevantes do problema: o tempo de deformação  $\tau_d \sim \lambda\mu a/\sigma_o$  e o tempo do escoamento externo imposto  $\tau_e \sim 1/\dot{\gamma}$ . No caso presente, se  $\lambda$  é grande,  $\tau_d \gg \tau_e$ . Isto significa que em cisalhamento simples, partículas com altas viscosidades giram, aproximadamente, com a vorticidade do escoamento externo e sofrem pequenas deformações mesmo em altas taxas de cisalhamento.

Na condição anterior pode-se escrever a equação diferencial que governa a taxa de variação de  $\mathbf{A}$  em termos da derivada de Jaumann,  $D/Dt$  (Rallison, 1980). Esta derivada temporal é observada de um sistema de referência que gira (mas não deforma) com a partícula (i.e uma derivada temporal girando com  $\underline{\Omega}$ , sendo as partículas livres de torque). Aplicando-se a condição de contorno cinemática, Eq. (3), para este caso:

$$\frac{DA_{ij}}{Dt} = \frac{\partial A_{ij}}{\partial t} - \hat{Ca}W_{ik}A_{kj} + \hat{Ca}A_{ik}W_{kj} = \frac{5}{2\lambda}\hat{Ca}E_{ij} - \frac{20}{19}A_{ij}. \quad (8)$$

$\mathbf{W} = 0.5(\mathbf{ij} - \mathbf{ji})$  é o tensor vorticidade para cisalhamento simples e as funções  $f(\lambda)$  e  $g(\lambda)$  foram simplificadas no limite de altos  $\lambda$  para:  $f(\lambda) \sim \frac{5}{2\lambda}$  e  $g(\lambda) \sim \frac{20}{19\lambda}$ . A Eq. (8) leva em consideração o efeito da vorticidade do solvente na evolução da forma da partícula.

Para o caso de cisalhamento simples, Eq. (8) reduz-se ao seguinte sistema adimen-

sional de equações diferenciais ordinárias de primeira ordem :

$$\begin{aligned} \dot{A}_{11} + \frac{20}{19}A_{11} &= \hat{C}aA_{12}; & \dot{A}_{12} + \frac{20}{19}A_{12} &= \frac{5}{4\lambda}\hat{C}a + \frac{\hat{C}a}{2}(A_{22} - A_{11}); \\ \dot{A}_{13} + \frac{20}{19}A_{13} &= \frac{\hat{C}a}{2}A_{23}; & \dot{A}_{22} + \frac{20}{19}A_{22} &= -\hat{C}aA_{12}; \\ \dot{A}_{23} + \frac{20}{19}A_{23} &= -\frac{\hat{C}a}{2}A_{13}; & \dot{A}_{33} + \frac{20}{19}A_{33} &= 0. \end{aligned}$$

Resolvendo-se o sistema acima para a solução estacionária, obtém-se:

$$\begin{aligned} A_{12} &= \frac{475\hat{C}a}{\lambda(400 + 361\hat{C}a^2)} + O(\lambda^{-2}); & A_{11} &= \frac{1805\hat{C}a^2}{4\lambda(400 + 361\hat{C}a^2)} + O(\lambda^{-2}); \\ A_{22} &= -A_{11}; & A_{13} &= A_{23} = A_{33} = 0. \end{aligned} \quad (9)$$

## 4. APLICAÇÕES E DISCUSSÕES

### 4.1. Deformação e ângulo da partícula

Define-se a medida escalar da magnitude de deformação da partícula como sendo  $D = (\alpha_{max} - \alpha_{min})/2$ , em que  $\alpha_{max}$  e  $\alpha_{min}$  são, respectivamente, as deformações principais máxima e mínima ou autovalores da matriz distorção  $\mathbf{A}$ . As direções das deformações principais ou os ângulos entre essas direções e o eixo horizontal  $x$  são determinados conhecendo-se os correspondentes autovetores de  $\mathbf{A}$ . Calculando-se os autovalores  $\alpha^i$  e os correspondente autovetores  $\mathbf{v}^i$  do tensor distorção, com as componentes dadas pela Eq. (9), determina-se o ângulo  $\beta$  entre a direção principal de deformação e a direção  $x$ ,  $(1, 0, 0)$ ,  $\beta = \arccos(v_x^1 / |\mathbf{v}^1|)$ , e a deformação da partícula como sendo

$$D = \frac{95\hat{C}a}{4\lambda} \frac{1}{\sqrt{400 + 361\hat{C}a^2}} + O(\lambda^{-2}). \quad (10)$$

Aqui  $\mathbf{v}^1 = \left[ \frac{19}{20} \left( \hat{C}a + \frac{1}{19} \sqrt{400 + 361\hat{C}a^2} \right), 1, 0 \right]$ .

### 4.2. Aplicação da teoria à reologia

Neste ponto será mostrado que emulsões diluídas compostas de partículas de altas viscosidades quando sujeitas a altas taxas de cisalhamento apresentam um comportamento não-newtoniano com diferença de tensões normais e comportamento *shear thinning*. Para a condição de altos  $\lambda$ , a solução permanente do tensor distorção,  $\mathbf{A}$ , é dada pelas Eqs. (9) e as componentes dos stresslets das partículas são, respectivamente, dadas por:

$$\sigma_{12}^p = \frac{4}{3}\pi a^3 \mu \dot{\gamma} \left( \frac{5}{2} - \frac{25}{4\lambda} + 4A_{12} \right) \quad (11)$$

$$\sigma_{11}^p = \frac{4}{3}\pi a^3 \mu \dot{\gamma} (4A_{11}); \quad \sigma_{22}^p = -\sigma_{11}^p. \quad (12)$$

Avaliando-se a contribuição macroscópica das partículas na emulsão pela aplicação da média volumétrica definida na Eq. (5), determina-se que a viscosidade efetiva da emulsão é, agora, uma função da taxa de cisalhamento:

$$\frac{\mu_{eff}}{\mu}(\hat{C}a) = 1 + \frac{5}{2}\phi - \frac{\phi}{\lambda} \left( \frac{25}{4} - \frac{1900}{400 + 361\hat{C}a^2} \right) + O(\lambda^{-2}\phi^2), \quad (13)$$

enquanto as diferenças de tensões normais médias adimensionais  $N_1$  e  $N_2$  são obtidas, respectivamente, como sendo  $N_2(\hat{C}a) = n\langle(\sigma_{22}^p - \sigma_{33}^p)\rangle = -N_1/2$ , and

$$N_1(\hat{C}a) = n\langle(\sigma_{11}^p - \sigma_{22}^p)\rangle = \frac{\phi}{\lambda} \left( \frac{3610\hat{C}a^2}{400 + 361\hat{C}a^2} \right) + O(\lambda^{-2}\phi^2). \quad (14)$$

Cabe ressaltar que, por conveniência, enquanto as tensões cisalhantes foram adimensionalizadas na forma  $\sigma_{12}/\mu\dot{\gamma}$ , as tensões normais foram adimensionalizadas como  $\hat{C}a \sigma_{11}/\mu\dot{\gamma}$ .

### 4.3. Comparação com resultados de simulação numérica

Com a finalidade de ilustrar a validade da análise anterior, os resultados preditos pela presente teoria são comparados com recentes simulações numéricas (Cristini et al. 1998, Cunha & Loewenberg 1999). Os parâmetros usados para comparação foram: a deformação, o ângulo da partícula e a contribuição das partículas para o tensor de tensões efetivo da emulsão, medida em termos das propriedades  $(\mu_{eff} - \mu)/\phi\mu$ ,  $N_1/\phi$  e  $N_2/\phi$ , avaliadas por meio das Eqs. (13) e (14).

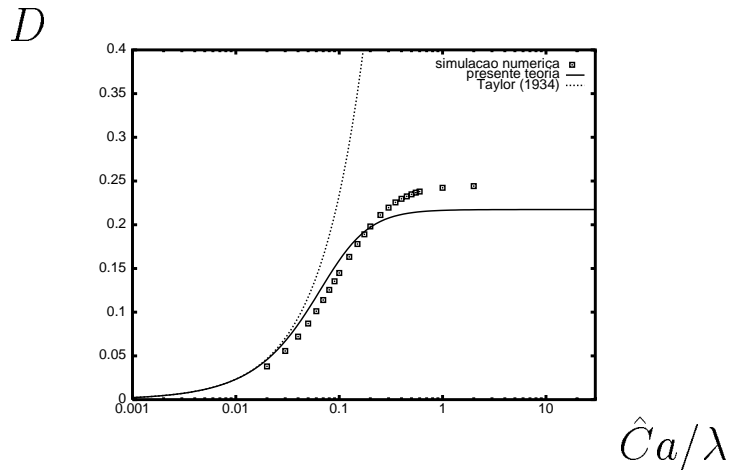


Figura 1: Variação da deformação da partícula com a taxa de cisalhamento adimensional  $\hat{C}a$ , para  $\lambda = 10$ . As linhas pontilhadas representam a teoria de Taylor (1934), a linha cheia a presente teoria e os pontos são resultados de simulação numérica.

As Figs. 1 e 2 mostram, respectivamente, como a deformação e o ângulo da partícula em relação à direção do escoamento variam com a taxa de cisalhamento  $\hat{C}a$ . Os resultados teóricos são comparados com valores numéricos para  $\lambda = 10$ . Observa-se que a teoria proposta descreve de forma satisfatória a deformação e a orientação das partículas tanto em baixas como em altas taxas de cisalhamento em contraste com a teoria de Taylor (1934) que limita-se a regimes de baixas taxas de cisalhamento. Enquanto a Fig. 1

mostra que a deformação aumenta a partir de zero com aumento da taxa de cisalhamento do escoamento (i.e.  $\hat{C}a$ ), a Fig. 2 mostra que o ângulo entre a direção principal de deformação e a direção do escoamento (i.e.  $x$ ) decresce a partir de, aproximadamente,  $\pi/4$ , em regime de baixas taxas de cisalhamento, para ângulos próximos de zero em altas taxas de cisalhamento. Como será visto a seguir, este alinhamento das partículas na direção do escoamento explica qualitativamente porque, mesmo para pequenas deformações, a emulsão apresenta comportamento *shear thinning* e tensões elásticas. Nossos resultados mostram também que em cisalhamento simples, partículas com viscosidade consideravelmente maior que a do solvente não rompem em altas taxas de cisalhamento, com  $D$  atingindo o limite assintótico  $D = 5/4\lambda$  quando  $\hat{C}a \rightarrow \infty$ , resultado este obtido também por Taylor (1934). O resultado acima pode ser explicado de um ponto de vista físico,

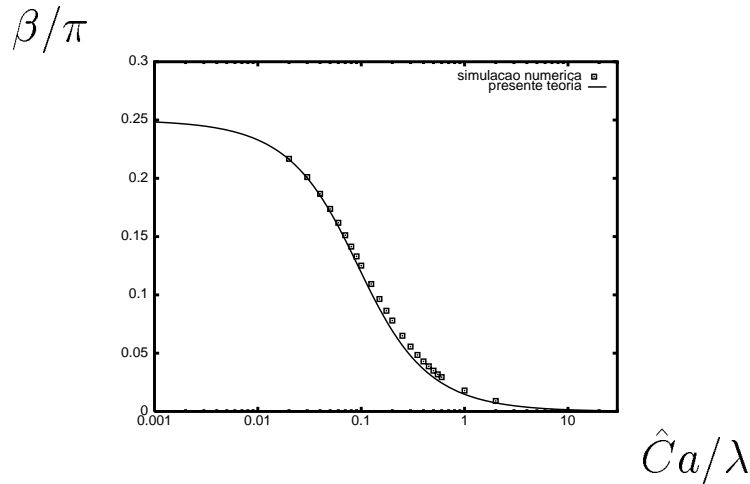


Figura 2: Variação do ângulo da partícula com a taxa de deformação adimensional, para  $\lambda = 10$ .

levando-se em consideração que na condição de partículas com altos  $\lambda$ , as taxas do movimento de deformação da ordem de  $\sigma_o/(\lambda\mu a)$  são muito menores que as taxas de rotação da partícula cuja ordem de magnitude é  $\dot{\gamma}$ . Desta maneira, como em escoamento cisalhamento simples existe vorticidade, se a partícula possui alta viscosidade o movimento de rotação dominará sempre o movimento de deformação, independente da intensidade do escoamento (i.e. taxa de cisalhamento). A Fig. 3 mostra os resultados de nossas simulações numéricas para forma estacionária de partículas. A Fig. 4(c) ilustra o fato de que em emulsões diluídas com altas taxas de viscosidade, sujeitas a cisalhamento simples, as partículas são elipsóides com eixo principal praticamente alinhado na direção  $x$  e, para maiores valores de  $\lambda$  (i.e.  $> 10$ ), as partículas são levemente deformadas tendo um movimento próximo ao de rotação de corpo rígido. As Figs. 4 e 5 apresentam as comparações entre a teoria e as simulações computacionais referentes à viscosidade da fase dispersa e as diferenças de tensões normais, respectivamente. Conforme pode ser visto na Fig. 4 o comportamento *shear thinning* previsto pela nossa teoria concorda bem com os resultados numéricos para  $\lambda = 10$ , em toda a faixa de taxas de cisalhamento simuladas. O gráfico mostra dois limites assintóticos nos quais a emulsão apresenta comportamento Newtoniano e uma região de *shear thinning*, onde a viscosidade efetiva de emulsão depende da taxa de cisalhamento. Em baixas taxas de cisalhamento (pequenos  $\hat{C}a$ ) a emulsão comporta-se como um fluido Newtoniano equivalente com viscosidade de Taylor. No limite de altas taxas de cisalhamento o comportamento da emulsão também é Newtoniano, mas com uma viscosidade efetiva associada com partícula tipo *blob*, onde a tensão superficial prati-

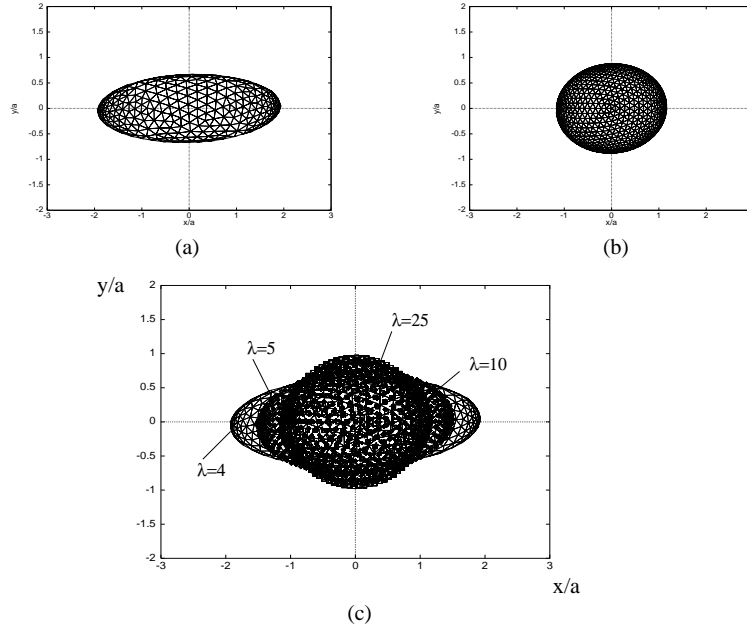


Figura 3: Formas típicas da projeção de partículas no plano de escoamento obtidas de simulações numéricas para altas razões de viscosidade  $\lambda$ . (a)  $\lambda = 4$  e  $\hat{C}a = 16$ ; (b)  $\lambda = 10$  e  $\hat{C}a = 10$ ; (c) superposição da geometria das partículas para diferentes valores de  $\lambda$ .

camente não exerce influência no comportamento reológico da emulsão. O *shear thinning* observado é aproximadamente de 17% da viscosidade efetiva de Taylor.

A Fig. 6 mostra uma concordância qualitativa entre os resultados analíticos e numéricos. Pode-se observar para todas as taxas de cisalhamento que, enquanto a primeira diferença de tensões normais  $N_1$  é uma função positiva de  $\hat{C}a$ , a segunda diferença  $N_2$  é menor que a primeira e sempre negativa; um comportamento típico da maioria dos líquidos elásticos. Observa-se também que em baixas taxas de cisalhamento as diferenças de tensões normais aparecem como um efeito de segunda ordem sendo proporcional a  $\dot{\gamma}^2$  ou de acordo com a nossa adimensionalização  $\lambda a N_1 / \sigma_o \propto \hat{C}a^2$  e  $\lambda a N_2 / \sigma_o \propto \hat{C}a^2$ .

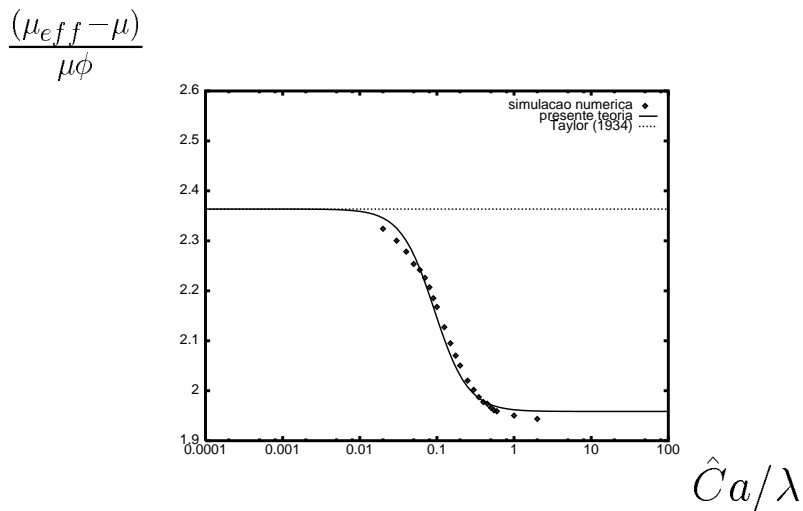


Figura 4: Variação da viscosidade da fase dispersa com a taxa de deformação adimensional, para  $\lambda = 10$ .

Diferente dos modelos *ad hoc* usados na engenharia para descrever o comportamento



*shear thinning* do escoamento de fluidos não-newtonianos, nossa análise básica prevê que efeitos não-lineares (elásticos), associados com a diferença de tensões normais, são importantes no caso de emulsões. A origem do comportamento *shear thinning* e a presença da diferença de tensões normais tem explicação no fato de que quando a emulsão é solicitada a altas taxas de cisalhamento as partículas deformam e o eixo principal de deformação tende a se alinhar na direção do escoamento (ver Fig. 4). Essa elongação na direção do escoamento oferece menos resistência ao cisalhamento da emulsão como um todo e produz a diferença de tensões normais observadas. De uma outra maneira, pode-se dizer que a deformação e o alinhamento das partículas produz uma anisotropia na microestrutura da emulsão que leva a uma anisotropia de forças. A força restauradora de tensão superficial é maior na direção principal de deformação do que nas outras direções ortogonais, dando origem a uma diferença de tensões normais. Estes resultados ajudam a explicar de um ponto de vista fenomenológico porque as emulsões concentradas são *shear thinning* e apresentam altas diferenças de tensões normais.

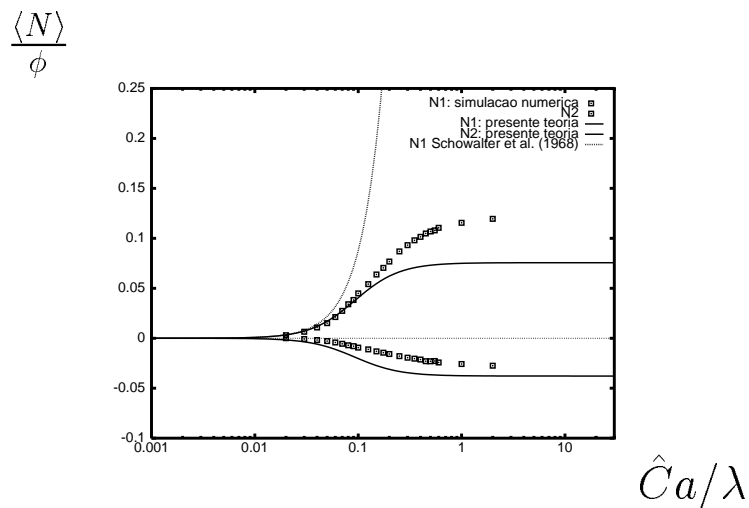


Figura 5: Variação das diferenças de tensões normais  $N_1$  e  $N_2$  com a taxa de deformação adimensional, para  $\lambda = 10$ .

### ***Agradecimentos***

Os autores agradecem a CAPES-Brasília/Brasil e ao CNPq-Brasília/Brasil pelo suporte financeiro.

### **REFERÊNCIAS**

- Barthés-Biesel, D. & Acrivos, A., 1973, The rheology of suspensions and its relation to phenomenological theories for non-Newtonian Fluids, *Int. J. Multiphase Flow*, **1**, 1.
- Batchelor, G.K., 1970, The stress in a suspension of force-free particles, *J. Fluid Mech.*, **41**, 545.
- Batchelor, G.K., 1976, Developments in microhydrodynamics, *In Theoretical and Applied Mechanics*, ed. W. Koiter. Amsterdam, 33.
- Cox, R.G., 1969, The deformation of a drop in a general time-dependent fluid flow, *J. Fluid Mech.*, **237**, 601.

- Cristini, V., Blawdziewicz, J. & Loewenberg, M., 1998, Drop breakup in three-dimensional viscous flows, *Phys. Fluids*, **10**, 1781.
- Cunha, F.R., & Loewenberg M., 1999 Numerical simulation of suspension rheology, (*in preparation*).
- Cunha, F.R., 1997, On the fluctuations in a random suspension of sedimenting particles, *J. of the Braz. Soc. Mechanical Sciences*, **19**, 4, 474.
- Einstein, A., 1956, Investigations on the theory of the Brownian movement, *Dover*. A translation of a paper appearing in *Ann. d. Phys.*, **19**, 371.
- Frankel, N.A. & Acrivos, A., 1970, The constitutive equation for a dilute emulsion, *J. Fluid Mech.*, **44**, 65.
- Jeffreys, H. & Jeffreys, B.S., 1946, Methods of mathematical physics, *Cambridge University Press*.
- Lamb, H., 1932, Hydrodynamics. 6th ed, *Cambridge University Press*.
- Landau, L.D. & Lifshitz, E.M., 1987, Fluid Mechanics, Course of theoretical Physics, 2nd ed, *Pergamon Press*, **6**.
- Loewenberg, M. & Hinch, E.J. 1996, Numerical simulations of a concentrated emulsion in shear flow, *J. Fluid Mech.*, **321**, 395-419.
- Rallison, J.M., 1980, Note on the time dependent deformation of a viscous drop which is almost spherical, *J. Fluid Mech.*, **98**, 625.
- Schowalter, W.R, Chaffey, C.E. & Brenner, H., 1968, Rheological behaviour of a dilute emulsion, *Journal of Colloid and Interface Science.*, **26**, 152.
- Taylor, G.I., 1932, The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid, *Proc. R. Soc. A.*, **138**, 41.
- Taylor, G.I., 1934, The formation of emulsions in definable fields of flow, *Proc. R. Soc. A.*, **146**, 501.

### ***Hydrodynamic and Rheology of a Dilute Emulsion with High Viscosity Ratio***

The small deformation theory is applied for studying the rheological behavior of a dilute emulsion undergoing a simple shear flow. This article shows the link between the macrorheology with the deformation and orientation of the droplets by the flow (i.e. micro-mechanics). The shape and the interfacial velocity of a stationary drop is used to compute the contribution of the drop to the effective stress tensor of the emulsion. The off-diagonal shear component and the normal stress differences are calculated. The theory is compared with results from numerical simulations at a high viscosity ratio. An important conclusion is that a dilute emulsion composed by viscous drops exhibits shear-thinning and elastic behavior at moderate shear rates.

**Keywords:** *Rheology, Dilute Emulsion, Drop Deformation*