



UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
DEPARTAMENTO DE FÍSICA – CCEN
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

PEDRO HENRIQUE AMORIM ANJOS

**EFEITOS DE MOLHAMENTO EM INSTABILIDADES
HIDRODINÂMICAS E EM FORÇAS ADESIVAS EM
FLUIDOS CONFINADOS**

Recife
2015

PEDRO HENRIQUE AMORIM ANJOS

**EFEITOS DE MOLHAMENTO EM INSTABILIDADES
HIDRODINÂMICAS E EM FORÇAS ADESIVAS EM FLUIDOS CONFINADOS**

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Física.

Orientador:
Prof. Dr. José Américo de Miranda Neto
Universidade Federal de Pernambuco

Recife
2015

Catálogo na fonte
Bibliotecário Jefferson Luiz Alves Nazareno CRB4-1758

A611e Anjos, Pedro Henrique Amorim.
Efeitos de molhamento nas instabilidades hidrodinâmicas e em forças adesivas em fluidos confinados. / Pedro Henrique Amorim Anjos. – Recife: O Autor, 2015.
93 f.: fig.

Orientador: José Américo de Miranda Neto.
Dissertação (Mestrado) – Universidade Federal de Pernambuco. CCEN. Física, 2015.
Inclui referências e apêndices.

1. Dinâmica de fluidos. 2. Formação de padrões (Ciências físicas).
I. Miranda Neto, José Américo de. (Orientador). II. Título.

532.05 CDD (22. ed.) UFPE-FQ 2015-07

PEDRO HENRIQUE AMORIM ANJOS

**EFEITOS DE MOLHAMENTO EM INSTABILIDADES
HIDRODINÂMICAS E EM FORÇAS ADESIVAS EM FLUIDOS CONFINADOS**

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Física.

Aprovada em: 05/02/2015.

BANCA EXAMINADORA

Prof. Dr. José Américo de Miranda Neto (Orientador)
Universidade Federal de Pernambuco

Prof. Dr. Sérgio Galvão Coutinho (Examinador Interno)
Universidade Federal de Pernambuco

Prof. Dr. Sérgio André Fontes Azevedo (Examinador Externo)
Universidade Federal da Paraíba

Agradecimentos

Primeiramente, sou imensamente grato ao meu orientador e amigo, Prof. José Américo, por me guiar durante a minha graduação e mestrado. Eu o agradeço por toda a paciência e ajuda, e principalmente por ter acreditado no meu potencial para desenvolver esta dissertação. Sua forma única de encarar a ciência e o trabalho são as principais características que eu carregarei por toda a minha vida.

Agradeço também a toda minha família, principalmente aos meus pais e avós, que tanto se sacrificaram para que todas as minhas conquistas se tornassem possíveis. Eles sempre estiveram presentes em todos os momentos de dificuldade, me ajudando da melhor forma possível. Também gostaria de agradecer a Natália Iunskoski por toda paciência e por compreender os momentos de ausência durante a produção deste trabalho. Obrigado por sua minuciosa revisão dos capítulos.

Aos professores da banca examinadora: Sérgio Coutinho e Sérgio Azevedo pelo tempo dedicado à leitura e estudo desta dissertação. Pelas correções e sugestões construtivas que tornaram o trabalho mais rico.

Por fim, gostaria de agradecer a todos os amigos do Departamento de Física: Eduardo Dias, Fernando Benevides, Fillipe Cesar, Francisco Rocha, Gabriel Carvalho, João Vitor, Mário Rocha, Ricardo Batista, Rodolfo Brandão, Sérgio Lira, Tiago Araújo e Wellington Moreira.

Resumo

Consideramos o movimento da interface entre dois fluidos viscosos, imiscíveis e incompressíveis confinados em uma célula de Hele-Shaw radial. Quando o fluido de baixa viscosidade é injetado no centro da célula e desloca radialmente o fluido de alta viscosidade, a instabilidade de Saffman-Taylor entra em ação levando ao crescimento de estruturas em formato de dedos. Dependendo da natureza dos fluidos envolvidos, eles podem molhar as paredes da célula de Hele-Shaw, deixando para trás um filme molhante de espessura finita. Diante disso, investigamos a influência da camada de fluido molhante, deixada pelo fluido deslocado, na dinâmica linear e fracamente não-linear do sistema. Mais especificamente, examinamos como a instabilidade da interface e os mecanismos de formação de padrões (bifurcação e competição de dedos) são afetados pela presença da camada de filme molhante no limite de baixo número de capilaridade. Estudamos também uma variação da instabilidade de Saffman-Taylor usual induzida pela injeção: o problema do levantamento em célula de Hele-Shaw. Nossos resultados analíticos indicam que o molhamento tem um impacto significativo nos padrões não-lineares resultantes. Ele é responsável por uma atenuação na variação do comprimento dos dedos, enquanto que induz o aparecimento de estruturas que apresentam dedos pequenos e largos, provenientes do fluido não molhante, alternados por dedos pequenos e finos pertencentes ao fluido molhante. Durante o processo de levantamento, medidas adquiridas pelo teste de adesão quantificam a força adesiva de um fluido viscoso confinado entre placas paralelas. Experimentos e intensas simulações numéricas indicam que a formação de dedos afeta a força de levantamento, promovendo uma diminuição na magnitude da mesma. Concluimos este trabalho propondo um modelo analítico que forneça a força de adesão considerando não só o efeito de dedos da interface, mas também a ação do molhamento e de estresses viscosos normais.

Palavras-chave: Filme molhante. Saffman-Taylor. Célula de Hele-Shaw. Levantamento em célula de Hele-Shaw. Força de adesão.

Abstract

We consider the interfacial motion between two immiscible, incompressible, viscous fluids in the confined geometry of a radial Hele-Shaw cell. When the less viscous fluid is injected at the center and drives radially the more viscous fluid, the Saffman-Taylor instability takes place leading to the growth of fingerlike shapes. Depending on the nature of the fluids involved, they can wet the walls of the Hele-Shaw cell plates, leaving behind a film of finite thickness. In this framework, we investigate the influence of a thin wetting film trailing behind the displaced fluid on the linear and weakly nonlinear dynamics of the system. More specifically, we examine how the interface instability and the pattern formation mechanisms of finger tip-splitting and finger competition are affected by the presence of such a film in the low capillary number limit. We also examined a variant of the usual injection-driven Saffman-Taylor instability: the lifting Hele-Shaw cell problem. Our analytical results indicate that wettability has a significant impact on the resulting nonlinear patterns. It restrains finger length variability while inducing the development of structures presenting short, blunt penetrating fingers of the nonwetting fluid, alternated by short, sharp fingers of the wetting fluid. During the lifting process, probe-tack measurements evaluate the adhesion strength of viscous fluids confined between parallel plates. Existing meticulous experiments and intensive numerical simulations indicate that fingering formation affects the lifting force, making it to decrease in intensity. We conclude this work by proposing an analytical model that computes the lifting adhesion force by taking into account not only the effect of interfacial fingering, but also the action of wetting, and viscous normal stresses.

Keywords: Wetting film. Saffman-Taylor. Hele-Shaw cell. Lifting flow. Adhesion strength.

Lista de Figuras

- 1.1 Representação esquemática da injeção em célula de Hele-Shaw radial. b representa o espaçamento constante entre as placas e a cor cinza indica o fluido externo de maior viscosidade. As pequenas ondulações na interface crescem e dão origem aos dedos viscosos. 14
- 1.2 Na figura à esquerda (retirada da Ref. [34]), temos um experimento que ilustra a evolução temporal dos padrões obtidos na injeção em célula de Hele-Shaw radial, enquanto que à direita temos uma simulação do problema (cortesia do Dr. François Gallaire). As setas vermelhas indicam a bifurcação dos dedos, fenômeno característico e de maior evidência nesse sistema. 15
- 1.3 Representação esquemática do levantamento em célula de Hele-Shaw radial. $b(t)$ representa o espaçamento dependente do tempo entre as placas, uma vez que a placa superior é levantada. A cor cinza indica o fluido interno de maior viscosidade. Figura retirada e adaptada da Ref. [11]. 15
- 1.4 Na figura à esquerda (retirada da Ref. [18]), temos quatro ilustrações que mostram a interface em um experimento de levantamento para diferentes valores de tempo, enquanto que à direita (figura retirada da Ref. [17]) temos uma simulação do problema. As setas vermelhas indicam a competição dos dedos invasores, fenômeno que se manifesta de forma mais evidente nesse sistema. 16
- 1.5 Perfil típico da força de levantamento F em função do deslocamento L da placa superior. A curva quantifica a resposta adesiva do fluido confinado. 18
- 1.6 Simulação numérica do processo de levantamento empregado no teste de adesão. À esquerda temos uma visão lateral do esticamento do fluido confinado para diferentes instantes de tempo, enquanto que à direita temos a visão superior das interfaces fluido-fluido correspondentes. Percebe-se que durante todo tempo a interface nunca permanece circular (com exceção para o tempo inicial), apresentando sempre dedos viscosos que crescem e competem. Figura retirada da Ref. [41]. 19
- 2.1 Representação do problema da injeção radial na célula de Hele-Shaw. η_1 (η_2) representa a viscosidade do fluido interno (externo), enquanto que Q é a taxa constante de injeção. A linha tracejada corresponde à evolução da interface circular não-perturbada com raio $R(t)$, e a curva sólida ondulada descreve a interface perturbada $\mathfrak{R}(\theta, t) = R(t) + \zeta(\theta, t)$, onde θ é o ângulo azimutal e b é o espaçamento entre as placas. 23

LISTA DE FIGURAS

2.2	Dinâmica da interface com efeito de molhamento: à medida que o fluido 2 é deslocado pelo fluido 1, uma fina camada de fluido 2 fica aderida às paredes da célula. β_c corresponde ao ângulo de contato estático, L é a variação de comprimento lateral e I, II e III representam as regiões mencionadas por Park e Homsy [32]. Figura retirada e adaptada da Ref. [32].	25
2.3	Taxa de crescimento linear $\lambda(n)$ em função dos modos n , no tempo $t = 6.5$ s, para o caso sem molhamento ($\gamma = 0$) e com molhamento ($\gamma = 2/3$). O máximo das curvas é indicado por pequenos pontos.	29
2.4	Evolução temporal das amplitudes de perturbação dos modos cossenos a_n e a_{2n} . As curvas tracejadas (sólidas) são plotadas para $\gamma = 0$ ($\gamma = 2/3$).	30
2.5	Evolução temporal das interfaces resultante da interação de dois modos cossenos $n = 4$ e $2n = 8$: (a) $\gamma = 0$, e (b) $\gamma = 2/3$.	31
2.6	Evolução temporal das amplitudes de perturbação do modo cosseno $a_{n/2}$ e seno $b_{n/2}$. As curvas tracejadas (sólidas) são plotadas para $\gamma = 0$ ($\gamma = 2/3$).	32
2.7	Evolução temporal das interfaces resultante da interação de dois modos $n = 4$ e $n/2 = 2$ (ambos senos e cossenos) para (a) $\gamma = 0$, e (b) $\gamma = 2/3$. Os tempos usados para plotar cada uma das interfaces foram os mesmos da Fig. 2.5. Os círculos tracejados foram adicionados para facilitar a visualização da competição entre os dedos do fluido 1.	32
2.8	Diferença entre o comprimento de dedos consecutivos $\Delta\mathfrak{R}$ do fluido 1 em função do tempo, para $\gamma = 0$ e $\gamma = 2/3$. Esta figura usa os mesmos parâmetros físicos das Figs. 2.6 e 2.7. É evidente que a competição entre os dedos é diminuída pela camada de fluido molhante.	33
3.1	Desenho esquemático do problema do levantamento em célula de Hele-Shaw.	36
3.2	Menisco do perfil da interface nas situações: (a) Injeção e (b) Levantamento. β_c é o ângulo de contato estático medido entre as placas e o menisco do perfil da interface. Assumindo que o perfil seja circular, temos $\beta_c = 0$ em (a) e $\beta_c = \pi$ em (b).	38
3.3	(a) Evolução temporal, quando o molhamento não é levado em consideração ($\gamma = 0$), das interfaces resultantes da interação dos modos fundamental n , sub-harmônico $n/2$ e primeiro harmônico $2n$. As interfaces são plotadas para intervalos de tempo iguais e cores mais escuras significam tempos maiores. As curvas tracejadas foram adicionadas para destacar a competição dos dedos, enquanto que as setas indicam a posição radial dos dedos invasores provenientes do fluido 2 (externo). (b) Interface resultante ampliada (setor angular $0 \leq \theta \leq \pi/2$).	40

LISTA DE FIGURAS

- 3.4 (a) Evolução temporal, quando o molhamento é levado em consideração ($\gamma = 2/3$), das interfaces resultantes da interação dos modos fundamental n , sub-harmônico $n/2$ e primeiro harmônico $2n$. As interfaces são plotadas para intervalos de tempo iguais e cores mais escuras significam tempos maiores. As curvas tracejadas foram adicionadas para destacar a competição dos dedos, enquanto que as setas indicam a posição radial dos dedos invasores provenientes do fluido 2 (externo). (b) Interface resultante ampliada (setor angular $0 \leq \theta \leq \pi/2$). 41
- 3.5 Evolução temporal da função competição $C(n, t)$ sem considerar o molhamento ($\gamma = 0$, curva tracejada), e considerando o efeito de fluido molhante ($\gamma = 2/3$, curva sólida). 44
- 3.6 Variação da função ponta dos dedos $T(n, t)$ com o tempo t . A curva tracejada (sólida) é plotada para $\gamma = 0$ ($\gamma = 2/3$). 46
- 4.1 Desenho esquemático do aparato usado no teste de adesão. 48
- 4.2 Força de adesão F plotada em função do tempo reduzido t' para razão de aspecto $q = 54.5$ e parâmetro de tensão superficial $\tau_0 = 3.0 \times 10^{-5}$. Em $t = 0$, $n_c = 145$. A curva tracejada representa o resultado obtido pelo modelo mais simples [14, 17, 18, 20]. Os pontos experimentais (●) são do artigo de Nase *et al.* Ref. [18]. As três curvas sólidas referem-se às situações descritas neste trabalho, onde gradativamente incluímos os vários efeitos físicos considerados: primeiramente, apenas a formação de dedos; logo em seguida, dedos mais estresses viscosos normais e finalmente, dedos, estresses e molhamento. 52
- 4.3 Força de adesão F em função do tempo reduzido t' , para vários valores de razão de aspecto q e dois valores para o parâmetro de tensão superficial $\tau_0 : 3.0 \times 10^{-5}$ [Figs. 4.3(a)-4.3(c)], e 4.5×10^{-6} [Figs. 4.3(d)-4.3(f)]. Nas Figs. 4.3(a)-4.3(c) $n_c = 145$ em $t = 0$, enquanto que nas Figs. 4.3(d)-4.3(f) $n_c = 360$ em $t = 0$. As curvas teóricas referem-se à força de adesão calculada pelo modelo mais simples usado nas Refs. [14, 17, 18, 20] (curvas tracejadas), e pelo nosso modelo, que leva em consideração a ação conjunta da formação de dedos, efeitos de molhamento e estresses viscosos normais (curvas sólidas). Os pontos experimentais (●) são da Fig. 14 do artigo de Nase *et al.* - Ref. [18]. 54

Lista de Tabelas

- 4.1 p -valor associado com os dados das Figs. 4.3(a)-Fig. 4.3(f). Nível de significância do teste Kolmogorov-Smirnov: $\alpha = 0.05$. O melhor modelo é aquele que apresenta o maior p -valor.

Sumário

1	Introdução	13
1.1	Instabilidades hidrodinâmicas em célula de Hele-Shaw	13
1.1.1	Injeção em célula de Hele-Shaw radial com espaçamento constante	14
1.1.2	Célula de Hele-Shaw com espaçamento variável	16
1.2	Forças de adesão em fluidos confinados	17
1.3	Fluidos molhantes	17
1.4	Roteiro dos próximos capítulos	20
1.5	Lista de publicações	20
2	Injeção em célula de Hele-Shaw radial	22
2.1	Introdução	22
2.2	Análise fracamente não-linear	23
2.3	Efeitos do molhamento	28
2.3.1	Regime linear	28
2.3.2	Regime fracamente não-linear	28
2.3.2.1	Bifurcação de dedos	29
2.3.2.2	Competição de dedos	31
3	Célula de Hele-Shaw com espaçamento dependente do tempo	35
3.1	Introdução	35
3.2	Análise fracamente não-linear	36
3.3	Influência do molhamento na morfologia da interface	39
3.3.1	Competição de dedos	43
3.3.2	Formato dos dedos	45
4	Força de adesão em fluidos	47
4.1	Introdução	47
4.2	Dedução da força adesiva durante o levantamento	48
4.3	Discussão e comparação com os experimentos	51
5	Conclusão	57
	Referências	60
	Apêndice A: Derivação da velocidade normal à interface v_n para o problema da injeção	64

SUMÁRIO

Apêndice B: Radial viscous fingering: Wetting film effects on pattern-forming mechanism	66
Apêndice C: Influence of wetting on fingering patterns in lifting Hele-Shaw flows	74
Apêndice D: Adhesion force in fluids: Effects of fingering, wetting, and viscous normal stresses	85

CAPÍTULO 1

Introdução

1.1 Instabilidades hidrodinâmicas em célula de Hele-Shaw

A célula de Hele-Shaw clássica consiste em duas placas paralelas de espaçamento b (podendo ser constante ou ter uma dependência temporal), na qual dois fluidos de viscosidades diferentes são confinados. Nesse sistema, que pode assumir diversas geometrias (radial [1–3] ou retangular [4–7], por exemplo), o fluido menos viscoso desloca o fluido mais viscoso e a instabilidade hidrodinâmica de Saffman-Taylor [4] entra em ação. Dessa forma, a interface entre os fluidos se torna instável e começa a deformar-se, aparecendo estruturas conhecidas como dedos viscosos que, através de fenômenos não-lineares, dão origem a padrões com morfologia de notável complexidade. O espaçamento b entre as placas da célula corresponde à menor escala de comprimento ($b \approx 1$ mm), de forma que o fluxo é efetivamente bidimensional e governado pela lei de Darcy (velocidade proporcional ao gradiente de pressão do fluido). Durante o fluxo, qualquer ondulação (perturbação) formada na interface entre os fluidos aumenta o gradiente de pressão e, conseqüentemente, a velocidade local da interface. Essa ondulação cresce com maior velocidade em relação aos outros pontos da interface que não foram perturbados, dando origem a um dedo viscoso. Em contrapartida, se essa ondulação aparecer de forma mais afinada (estruturas pontiagudas), sua curvatura aumentará e a tensão superficial entre os fluidos tende a reduzir a pressão nesta área, fazendo com que essas perturbações se estabilizem e desapareçam.

A relevância do estudo da dinâmica das deformações (dedos viscosos) presentes na interface que separa dois fluidos torna-se evidente quando consideramos algumas aplicações práticas e tecnológicas onde tais instabilidades surgem naturalmente. Dependendo da natureza do problema estudado, o desenvolvimento de instabilidades entre os fluidos pode ser desejável ou não. Na mistura de dois fluidos miscíveis, por exemplo, é de conhecimento que a aparição de dedos viscosos na interface fluido-fluido promove uma aceleração do processo de mistura [8], de forma que a instabilidade de Saffman-Taylor é bem-vinda. Por outro lado, durante importantes processos de extração de petróleo, o surgimento das instabilidades prejudica sua eficiência: neste caso, a água é bombeada em jazidas subterrâneas (um meio poroso onde o fluxo pode ser aproximado por um fluxo tipo Hele-Shaw) de forma a deslocar o petróleo, que passa a ser recolhido em outro ponto da jazida. Aqui, temos um fluido menos viscoso (água) deslocando um fluido mais viscoso (petróleo), existindo então formação espontânea de dedos viscosos. Devido à instabilidade de Saffman-Taylor, o que pode ocorrer é o recolhimento d'água em vez de petróleo. Neste contexto, a aparição de dedos viscosos não é bem-vinda. Portanto, o estudo detalhado da dinâmica e dos possíveis métodos de controle (estabilização e desestabilização) de dedos viscosos são tópicos com aplicações industriais e tecnológicas de grande interesse atual.

Em uma célula de Hele-Shaw, as ondulações na interface podem ser induzidas de várias formas, dependendo apenas do problema considerado. Neste trabalho, por exemplo, estudaremos o problema da injeção (capítulo 2) e do levantamento em célula de Hele-Shaw (capítulos 3 e 4).

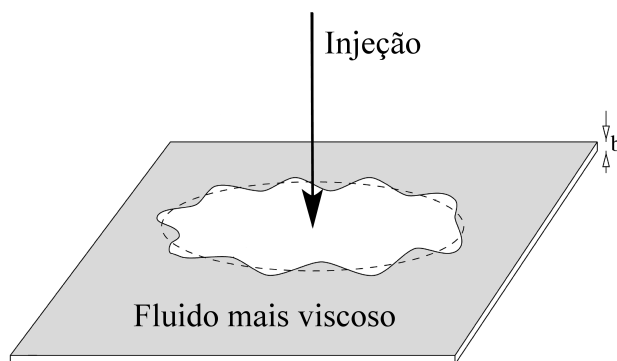


Figura 1.1 Representação esquemática da injeção em célula de Hele-Shaw radial. b representa o espaçamento constante entre as placas e a cor cinza indica o fluido externo de maior viscosidade. As pequenas ondulações na interface crescem e dão origem aos dedos viscosos.

1.1.1 Injeção em célula de Hele-Shaw radial com espaçamento constante

Neste problema, dois fluidos são confinados numa célula de Hele-Shaw radial com espaçamento b constante. O fluido interno, de menor viscosidade, é injetado no centro da célula e desloca o fluido externo (de maior viscosidade) radialmente. A interface entre os fluidos rapidamente se deforma, dando origem a dedos que competem e bifurcam-se inúmeras vezes. Sendo assim, novos dedos são continuamente gerados, resultando em padrões interfaciais bastante ramificados [9, 10]. Uma representação esquemática do sistema estudado pode ser vista na Fig. 1.1. Vale ressaltar que o fluxo inverso, no qual o fluido mais viscoso desloca o menos viscoso, é estável e a interface entre os fluidos evolui circularmente.

Apesar da notável complexidade dos padrões observados nos experimentos e simulações computacionais (ver Fig. 1.2), é possível verificar dois principais mecanismos não-lineares responsáveis pela formação dos padrões: a variação do comprimento dos dedos (mais conhecido como fenômeno de competição) e a bifurcação de dedos, sendo este último um fenômeno bastante evidente. Analisando os padrões da Fig. 1.2, obtidos por meio de experimento (ilustração da esquerda) e simulação numérica (ilustração da direita), é possível verificar que, inicialmente, pequenos dedos começam a aparecer na interface. Conforme a dinâmica evolui, tais dedos crescem e eventualmente dividem-se (ou bifurcam-se), resultando no surgimento de novos dedos. Este fenômeno está indicado por pequenas setas vermelhas e desempenha um importante papel na formação de padrões para o problema da injeção.

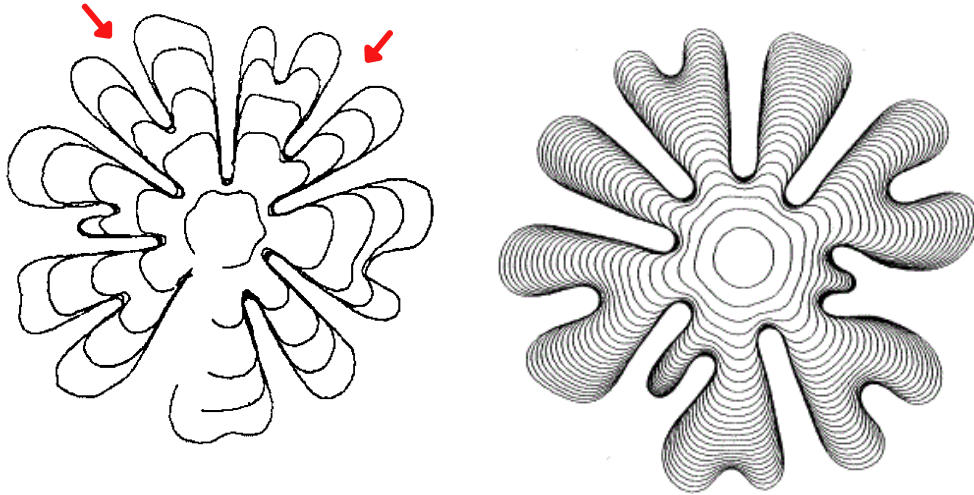


Figura 1.2 Na figura à esquerda (retirada da Ref. [34]), temos um experimento que ilustra a evolução temporal dos padrões obtidos na injeção em célula de Hele-Shaw radial, enquanto que à direita temos uma simulação do problema (cortesia do Dr. François Gallaire). As setas vermelhas indicam a bifurcação dos dedos, fenômeno característico e de maior evidência nesse sistema.

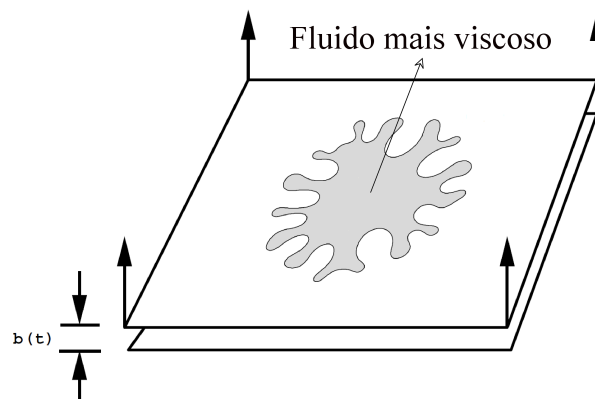


Figura 1.3 Representação esquemática do levantamento em célula de Hele-Shaw radial. $b(t)$ representa o espaçamento dependente do tempo entre as placas, uma vez que a placa superior é levantada. A cor cinza indica o fluido interno de maior viscosidade. Figura retirada e adaptada da Ref. [11].

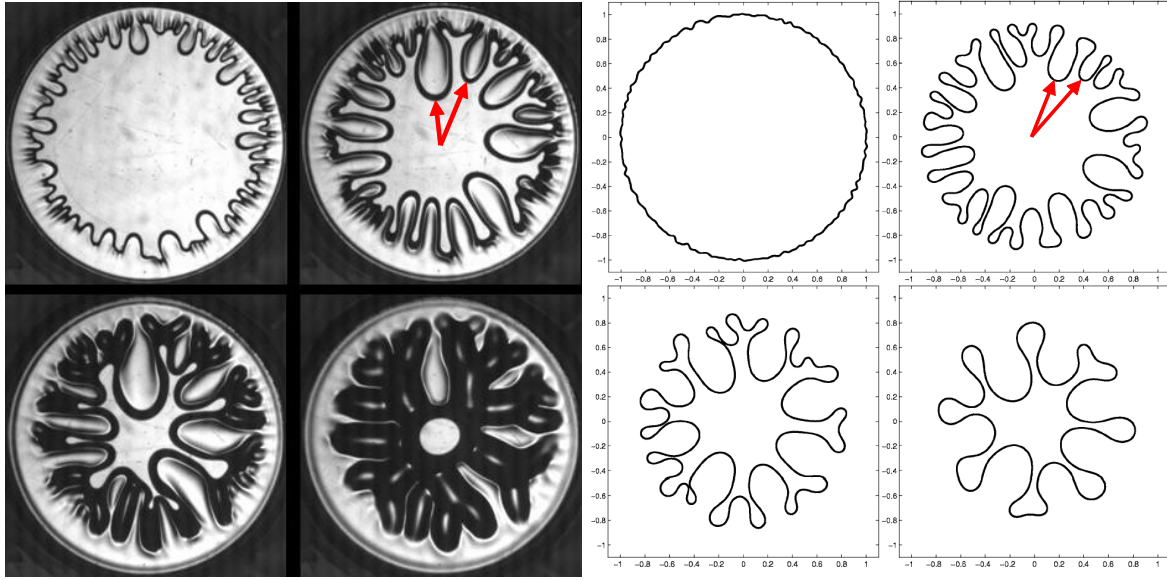


Figura 1.4 Na figura à esquerda (retirada da Ref. [18]), temos quatro ilustrações que mostram a interface em um experimento de levantamento para diferentes valores de tempo, enquanto que à direita (figura retirada da Ref. [17]) temos uma simulação do problema. As setas vermelhas indicam a competição dos dedos invasores, fenômeno que se manifesta de forma mais evidente nesse sistema.

1.1.2 Célula de Hele-Shaw com espaçamento variável

Como mencionado anteriormente, a instabilidade de Saffman-Taylor pode ser induzida de outras formas além do problema da injeção usual. Uma variação na indução da perturbação da interface pode ser obtida considerando que o espaçamento b entre as placas não seja mais constante, tendo assim uma dependência temporal ($b = b(t)$) [11]. A placa superior da célula de Hele-Shaw é levantada enquanto que a inferior permanece fixa. Conforme as placas se separam, a pressão do fluido mais viscoso (fluido interno) torna-se menor do que a pressão do fluido menos viscoso (externo). Nesse caso, ao contrário do que ocorre no problema da injeção, é o fluido externo que invade o fluido interno de maior viscosidade, tornando a interface instável. Uma representação esquemática do sistema estudado pode ser vista na Fig. 1.3. No início da dinâmica, é observado um grande número de dedos na interface e uma intensa competição (variabilidade de comprimentos) entre eles (ver Fig. 1.4). Em seguida, os dedos que dominam a competição se tornam mais largos, o número de dedos da interface diminui e, eventualmente, a interface se recirculariza.

Os padrões obtidos em experimentos e simulações computacionais de levantamento [12–18] são completamente diferentes dos obtidos por injeção [9, 10]. Basta analisar e comparar visualmente as Figs. 1.2 e 1.4 para notar as diferenças. No levantamento (ver os padrões obtidos na Fig. 1.4), o mecanismo de formação de padrões mais proeminente é a variação de comprimento dos dedos invasores (indicado por setas vermelhas na Fig. 1.4) pertencentes ao fluido menos viscoso (estes dedos apontam radialmente para dentro). No caso da injeção, a competição é o mecanismo não-linear que aparece de forma bastante discreta, enquanto que a bifurcação é evi-

dente. Mas percebe-se que a bifurcação de dedos é completamente extinta nos padrões obtidos por levantamento. Além disso, os dedos invasores, no problema do levantamento, são tipicamente mais largos em relação aos dedos que apontam para fora (provenientes do fluido mais viscoso). Outra importante característica do problema é que o número de dedos é bem maior em relação ao número de dedos presentes na interface para o problema da injeção. O processo de deformação de interface também é observado no teste de adesão de fluidos confinados, como veremos mais adiante.

1.2 Forças de adesão em fluidos confinados

A medição e caracterização de forças adesivas em fluidos viscosos têm sido bastante estudadas nos últimos anos [13–15, 17–29] e, ainda assim, muitos aspectos desta força não são totalmente compreendidos. Para medir a magnitude da força de um fluido espacialmente confinado, usa-se o conhecido teste de adesão ("probe-tack test") [30,31], no qual uma amostra de fluido viscoso é colocado entre placas paralelas e a placa superior pode ser levantada a uma taxa preestabelecida, enquanto que a placa inferior permanece fixa. O processo é similar ao experimento em célula de Hele-Shaw com espaçamento variável discutido anteriormente. O comportamento do fluido confinado, semelhante a uma cola, é causado pelo elevado atrito interno, que dissipa energia durante o fluxo induzido pela separação das placas. Durante o levantamento, a força necessária para levantar a placa é medida e o resultado de tais medidas é uma curva da força de adesão em função do deslocamento da placa superior ou do tempo. A curva quantifica a resposta adesiva da amostra de fluido e um perfil típico desta curva está ilustrado na Fig. 1.5. O gráfico mostra o crescimento da força, que rapidamente atinge seu máximo (pico da força) e então diminui assintoticamente para zero conforme a separação das placas aumenta.

Já é um fato bem estabelecido que, durante o teste de adesão (no qual a placa superior é levantada), a interface entre os fluidos deforma-se devido à instabilidade de Saffman-Taylor. Na Fig. 1.6, temos uma simulação computacional que mostra a separação das placas durante o teste de adesão. Percebe-se que conforme o fluido é esticado (ilustrações à esquerda da Fig. 1.6), a interface deforma-se e a presença de dedos viscosos ocorre de forma nítida (ilustrações à direita da Fig. 1.6). Curiosamente, todos os cálculos analíticos da força de adesão tomam como premissa que a interface evolui de forma estável e perfeitamente circular, fazendo com que apenas a ação de forças viscosas seja considerada. Tais previsões teóricas não se adequam de forma satisfatória aos dados experimentais [18] e, neste contexto, um modelo analítico que inclua de forma apropriada o efeito da formação de dedos ainda não foi desenvolvido.

1.3 Fluidos molhantes

A maioria dos trabalhos analíticos em fluxo de Hele-Shaw assumem que o fluido deslocado é completamente empurrado pelo fluido que o desloca, tendo ângulo de contato zero com a superfície (no caso estudado, as placas da célula). O fato é que, dependendo da natureza do fluido deslocado, uma fina camada de espessura finita pode ficar aderida às placas conforme o fluido é movido. Dizemos nesse caso que o fluido é molhante. Veja, por exemplo, o experimento de le-

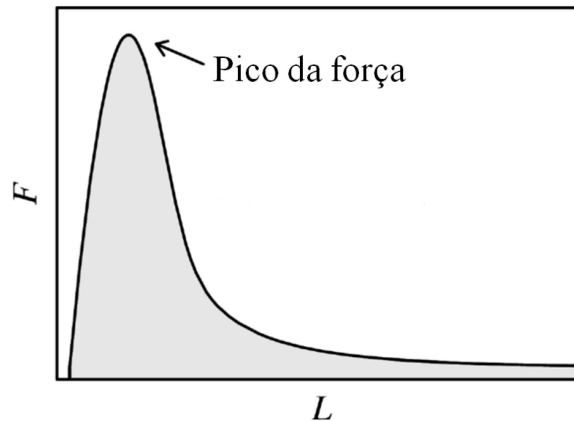


Figura 1.5 Perfil típico da força de levantamento F em função do deslocamento L da placa superior. A curva quantifica a resposta adesiva do fluido confinado.

vantamento mostrado na Fig.1.4: as manchas pretas, mais evidentes para tempos avançados do experimento, são resquícios do fluido interno deixado para trás (aderidos às placas) conforme o mesmo é deslocado pelo fluido invasor externo.

Esta camada de fluido molhante acaba por introduzir complicados efeitos tridimensionais ao problema. Em um popular artigo, Park e Homsy [32] sugeriram uma nova condição de contorno da pressão na interface fluido-fluido. Eles foram os primeiros autores a conduzirem uma análise teórica que combinava a aproximação de lubrificação de Bretherton [33] com as equações de Saffman-Taylor [34], através de uma dupla expansão assintótica da razão entre a espessura do filme fino e o comprimento transversal característico, e do número de capilaridade Ca (quantidade adimensional que representa uma medida relativa entre forças viscosas e tensão superficial) elevado à $1/3$. O resultado da inclusão do efeito de molhamento levou a uma correção da ordem de $Ca^{2/3}$ na condição de contorno da diferença de pressão na interface. De fato, comparação entre teoria [32, 35, 36] e experimentos [37, 38] em célula de Hele-Shaw retangular revelaram que a adição do efeito de molhamento, através da nova condição de pressão proposta por Park e Homsy, é realmente necessária para uma melhor concordância entre teoria e resultados experimentais. Isso mostra que o fluido molhante tem uma grande influência na dinâmica de dedos viscosos que aparecem no fluxo de Hele-Shaw.

Baseado em todos os fatos apresentados, o efeito de molhamento foi escolhido como tema central desta dissertação de mestrado. Ao longo dos próximos capítulos, vamos investigar a influência da fina camada de molhamento na dinâmica dos dedos viscosos. Mostraremos as modificações na morfologia dos padrões obtidos tanto no problema da injeção, quanto no problema do levantamento, através da análise precisa do efeito de fluido molhante nos mecanismos não-lineares responsáveis pela formação dos padrões (competição e bifurcação de dedos). Por fim, estudaremos a força de adesão de um fluido confinado, na tentativa de propor um novo modelo analítico para força de levantamento que leve em consideração não somente a formação de dedos viscosos, mas também a ação de estresses viscosos normais e efeito de molhamento.

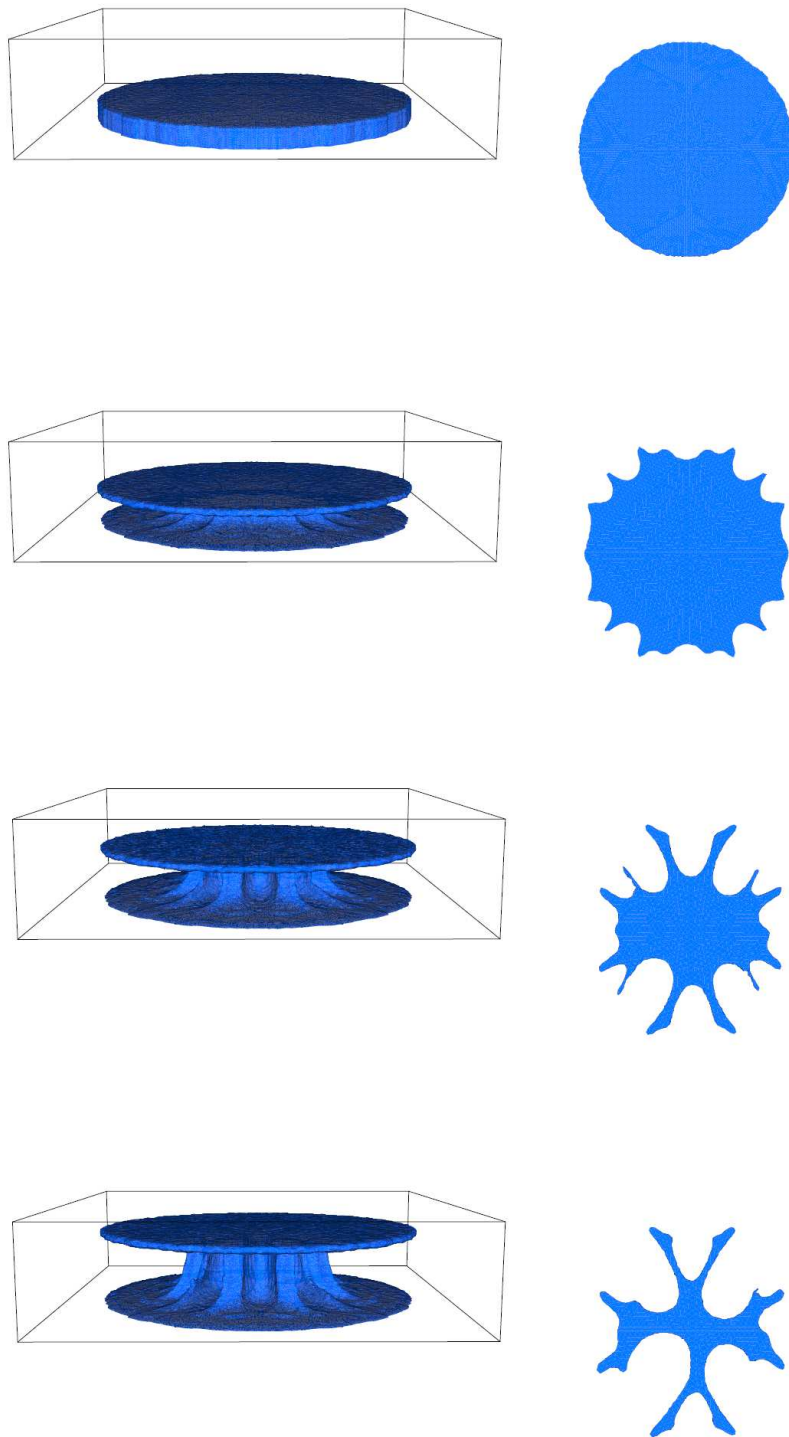


Figura 1.6 Simulação numérica do processo de levantamento empregado no teste de adesão. À esquerda temos uma visão lateral do esticamento do fluido confinado para diferentes instantes de tempo, enquanto que à direita temos a visão superior das interfaces fluido-fluido correspondentes. Percebe-se que durante todo tempo a interface nunca permanece circular (com exceção para o tempo inicial), apresentando sempre dedos viscosos que crescem e competem. Figura retirada da Ref. [41].

1.4 Roteiro dos próximos capítulos

- No Cap. 2, abordaremos o problema da injeção em célula de Hele-Shaw radial. Usaremos a lei de Darcy bidimensional, juntamente com as condições de contorno apropriadas, para descrever a dinâmica da instabilidade presente na interface entre dois fluidos viscosos, imiscíveis e incompressíveis. Através de uma equação de modos acoplados, investigaremos analiticamente o papel do fluido molhante na estabilidade linear e na dinâmica fracamente não-linear. Os resultados indicam que a presença da fina camada de fluido molhante introduz, de forma geral, uma estabilização no crescimento de dedos, atenuando os fenômenos não-lineares de bifurcação e competição de dedos [39].
- No Cap. 3, daremos continuidade ao estudo do efeito de molhamento, mas desta vez vamos considerar o problema do levantamento em célula de Hele-Shaw radial. De forma análoga ao que foi desenvolvido no Cap. 2, usaremos uma teoria perturbativa fracamente não-linear para ter acesso à influência do molhamento na morfologia das interfaces resultantes. Os resultados mostram que, na presença do molhamento, ocorre a formação de padrões onde há um crescimento de dedos largos e pequenos, provenientes do fluido invasor não-molhante, alternados por dedos mais finos e pontudos pertencentes ao fluido interno molhante [40]. Os dedos invasores também são evidentemente mais largos que os dedos que apontam para fora e, nesse contexto, há um maior acordo qualitativo com os resultados experimentais das Refs. [11–18] em relação ao caso sem molhamento.
- No Cap. 4, estudaremos forças adesivas em fluidos confinados em uma célula de Hele-Shaw cuja placa superior pode ser levantada (exatamente o mesmo sistema do Cap. 3). Vamos propor um modelo analítico mais preciso do que modelo usual, o qual apenas considera forças viscosas e a evolução de uma interface perfeitamente circular. Em nossa teoria, a formação de dedos, bem como os estresses viscosos normais e o molhamento serão levados em consideração. Comparando o nosso modelo teórico com os dados experimentais existentes, mostraremos que a inclusão destes três efeitos físicos levam a uma melhor concordância entre teoria e experimento para força de adesão.
- No Cap. 5, apresentaremos as conclusões de nossos resultados.

1.5 Lista de publicações

Durante a realização deste programa de mestrado, nossa pesquisa resultou na publicação dos seguintes artigos científicos:

1. P. H. A. Anjos e J. A. Miranda, *Radial viscous fingering: Wetting film effects on pattern-forming mechanisms*, Phys. Rev. E **88**, 053003 (2013).
2. P. H. A. Anjos e J. A. Miranda, *Influence of wetting on fingering patterns in lifting Hele-Shaw flows*, Soft Matter **10**, 7459 (2014). **Este artigo foi escolhido para ser a capa desta edição da revista Soft Matter.**

3. P. H. A. Anjos, E. O. Dias, L. Dias e J. A. Miranda, *Adhesion force in fluids: Effects of fingering, wetting, and viscous normal stresses*, artigo aceito pelo Phys. Rev. E.

Injeção em célula de Hele-Shaw radial

2.1 Introdução

Quando um fluido de baixa viscosidade, confinado entre duas placas estreitas, desloca um fluido de viscosidade mais alta, a interface entre eles se torna instável e começa a se deformar. Tal fenômeno é conhecido como instabilidade de Saffman-Taylor [4] e o dispositivo (duas placas estreitas) é denominado célula de Hele-Shaw. O problema de Saffman-Taylor tem sido estudado há mais ou menos cinquenta anos [34] e já é de conhecimento que a competição dinâmica na interface leva à formação de estruturas conhecidas como "dedos viscosos". Na geometria retangular da célula de Hele-Shaw [4–7], é observada a formação de dedos longos e estáveis. Quanto à geometria radial [1–3], na qual o fluido menos viscoso é injetado no centro da célula de Hele-Shaw e desloca radialmente o fluido mais viscoso, a estrutura resultante seria de dedos que competem (possuem diferentes comprimentos) e bifurcam-se repetidas vezes, dando origem a padrões bastante ramificados [9, 10]. Competição e divisão de dedos são os principais mecanismos não-lineares relevantes na formação dos padrões de dedos viscosos.

A dinâmica da evolução dos padrões numa célula de Hele-Shaw é regida pela bem estabelecida Lei de Darcy, a qual diz basicamente que a velocidade do fluido é proporcional ao negativo do gradiente de pressão, pela incompressibilidade do fluido e, ainda, por duas condições de contorno na interface [1–7, 9, 10, 34]: a diferença de pressão dada pela equação de Young-Laplace e a condição cinemática (continuidade) da componente normal da velocidade do fluido.

As equações que descrevem o fluxo em célula de Hele-Shaw ainda são objeto de estudo e, ao longo dos anos, têm sido modificadas na tentativa de melhorar a concordância entre as previsões teóricas e os resultados experimentais. Uma dessas modificações se refere ao fato de que o fluido deslocado, se for um fluido dito "molhante", deixa uma pequena camada de filme fino aderido às placas da célula de Hele-Shaw. Nessas circunstâncias, Park e Homsy [32] mostraram que, no limite de baixa capilaridade Ca (medida relativa entre forças viscosas e tensão superficial), a inclusão dos efeitos decorrentes da formação do filme fino levam a uma correção da ordem de $Ca^{2/3}$ na diferença de pressão na interface.

Comparações entre teoria [32, 35, 36] e experimentos [37, 38] revelaram que, de fato, a correção na diferença de pressão introduzida por Park e Homsy é necessária para se obter uma melhor concordância entre eles. No entanto, a maioria dos trabalhos envolvendo o efeito de molhamento se concentraram no estudo do fluxo em geometria retangular. Recentemente, alguns grupos fizeram a análise linear do efeito de molhamento no problema da injeção em fluxo radial [42, 43] sem ter acesso, portanto, à influência do efeito na competição e bifurcação de dedos. Nesse contexto, o efeito de molhamento nos principais mecanismos de formação

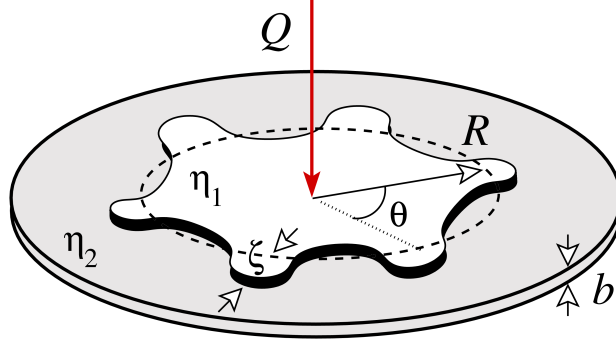


Figura 2.1 Representação do problema da injeção radial na célula de Hele-Shaw. η_1 (η_2) representa a viscosidade do fluido interno (externo), enquanto que Q é a taxa constante de injeção. A linha tracejada corresponde à evolução da interface circular não-perturbada com raio $R(t)$, e a curva sólida ondulada descreve a interface perturbada $\mathfrak{R}(\theta, t) = R(t) + \zeta(\theta, t)$, onde θ é o ângulo azimutal e b é o espaçamento entre as placas.

de padrões em célula de Hele-Shaw radial permanece relativamente obscuro e o estudo deste problema é o principal objetivo deste capítulo.

2.2 Análise fracamente não-linear

Considere dois fluidos viscosos, imiscíveis e incompressíveis confinados em uma célula de Hele-Shaw de espaçamento b (veja Fig. 2.1). Entre os dois fluidos há uma tensão superficial σ . O fluido 1 (viscosidade η_1) é injetado a uma dada taxa de injeção constante Q (igual à área ocupada por unidade de tempo) pelo centro da célula de Hele-Shaw, deslocando o fluido 2 (viscosidade η_2). Assim como feito nas Refs. [32, 33, 35–38, 42–44], a teoria fracamente não-linear será desenvolvida assumindo que o fluido 2 é molhante, ou seja, à medida que é deslocado pelo fluido 1, molha a célula de Hele-Shaw, deixando uma fina camada de fluido aderida às placas. Consideramos também que o número de capilaridade Ca é pequeno.

A interface perturbada é descrita por $\mathfrak{R}(\theta, t) = R(t) + \zeta(\theta, t)$, onde θ é o ângulo azimutal e $R(t)$ é o raio não-perturbado dependente do tempo. Pelo fato de Q ser uma taxa de injeção constante, é possível escrever $R(t) = \sqrt{R_0^2 + Qt/\pi}$, sendo $R(t=0) = R_0$ o raio não-perturbado no tempo inicial. Em nossa análise fracamente não-linear, expandimos a perturbação $\zeta(\theta, t)$ em uma série Fourier

$$\zeta(\theta, t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \zeta_n(t) \exp(in\theta), \quad (2.1)$$

com amplitudes de Fourier $\zeta_n(t)$ e números de onda discretos n . A inclusão do modo $n = 0$ é feita para manter a área da interface perturbada ($\mathfrak{A} = \pi R^2$) independente da perturbação ζ , fazendo com que o modo ($n = 0$) seja escrito em função dos outros modos $\zeta_0 = -(1/2R) \sum_{n \neq 0} |\zeta_n(t)|^2$. O objetivo é estudar a dinâmica das amplitudes ζ_n fazendo uma aná-

lise fracamente não-linear de modo que nossa teoria perturbativa considera apenas termos até segunda ordem em ζ .

Apesar do problema da célula de Hele-Shaw ser tridimensional, é possível tomar médias transversais de forma a obter $\mathbf{v}_j = \mathbf{v}_j(x, y)$ e $p_j = p_j(x, y)$, que são, respectivamente, as médias transversais da velocidade e da pressão ao longo do eixo z . Logo, a lei que rege a dinâmica de um fluido na célula de Hele-Shaw é a Lei de Darcy bidimensional [4, 34]:

$$\mathbf{v}_j = -\frac{b^2}{12\eta_j} \nabla p_j, \quad (2.2)$$

onde $j = 1, 2$ representa o fluido interno (1) ou externo (2). Tomando o rotacional da Lei de Darcy verificamos que o fluxo é irrotacional e junto com a condição de incompressibilidade temos:

$$\nabla \times \mathbf{v}_j = 0 \quad (2.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_j = 0, \quad (2.4)$$

definindo assim um potencial de velocidade ϕ_j ($\mathbf{v}_j = -\nabla \phi_j$) que obedece à equação de Laplace $\nabla^2 \phi_j = 0$. A solução mais geral desta equação pode ser expressa como uma expansão em série de Fourier de modo que, longe da interface, o campo de velocidade deve se aproximar de um fluxo estacionário não-perturbado com interface circular de raio R , logo:

$$\phi_j(r, \theta) = -\frac{Q}{2\pi} \log\left(\frac{r}{R}\right) + \sum_{n \neq 0} \phi_{jn}(t) \left(\frac{r}{R}\right)^{(-1)^{(j+1)|n|}} e^{in\theta}. \quad (2.5)$$

Reescrevendo a Eq. (2.2) em função do potencial de velocidade para cada um dos fluidos, subtraindo uma equação da outra e calculando no contorno que separa os fluidos ($r = \mathfrak{R}$), obtemos a equação de movimento para interface [3, 7]

$$A \left(\frac{\phi_1 + \phi_2}{2} \right) \Big|_{r=\mathfrak{R}} - \left(\frac{\phi_1 - \phi_2}{2} \right) \Big|_{r=\mathfrak{R}} = -\frac{b^2(p_1 - p_2)|_{r=\mathfrak{R}}}{12(\eta_1 + \eta_2)}, \quad (2.6)$$

onde o parâmetro adimensional $A = (\eta_2 - \eta_1)/(\eta_2 + \eta_1)$ é o contraste de viscosidade. Esta equação representa a dinâmica da interface pois é possível expressar os potenciais ϕ_j e a diferença de pressão ($p_1 - p_2$), ambos calculados na interface ($r = \mathfrak{R}$), em termos das amplitudes de perturbação ζ_n e suas derivadas no tempo $\dot{\zeta}_n$.

A diferença de pressão na interface que separa os fluidos estabelece a condição de contorno que inclui a contribuição da tensão superficial e do efeito de molhamento. Pela equação generalizada de Young-Laplace obtemos [32, 33, 35–38, 42–45]

$$(p_1 - p_2)|_{r=\mathfrak{R}} = \frac{\pi}{4} \sigma \kappa + \frac{2\sigma}{b} \cos \beta_c [1 + JCa^\gamma]. \quad (2.7)$$

O primeiro termo do lado direito da Eq. (2.7) representa a contribuição relacionada à tensão superficial e à curvatura κ da interface no plano da célula de Hele-Shaw. A expansão de κ até segunda ordem em ζ pode ser encontrada na Ref. [3]. O fator de $\pi/4$ é um efeito de

capilaridade estática proveniente da média da curvatura da interface. O segundo termo refere-se à contribuição da curvatura da interface na direção perpendicular ao planos da célula de Hele-Shaw, onde β_c (veja Fig. 2.2) corresponde ao ângulo de contato estático medido entre as placas e o menisco do perfil da interface. Assim como na maioria dos experimentos e modelos de molhamento, consideramos que um fluido não-molhante desloca um fluido molhante, de forma que $\beta_c = 0$. Por último, o terceiro termo da equação expressa a contribuição da fina camada de fluido deixada para trás à medida que o fluido molhante é deslocado. $Ca = \eta_2 v_n / \sigma$ é o número de capilaridade, v_n é a componente da velocidade normal à interface dada pelo produto interno da velocidade do fluido com o vetor unitário normal à interface $\hat{\mathbf{n}} = \nabla(r - \mathfrak{R}) / |\nabla(r - \mathfrak{R})|$, $J = 3.8$ e $\gamma = 2/3$. No Apêndice A, v_n é detalhadamente calculado até segunda ordem em ζ .

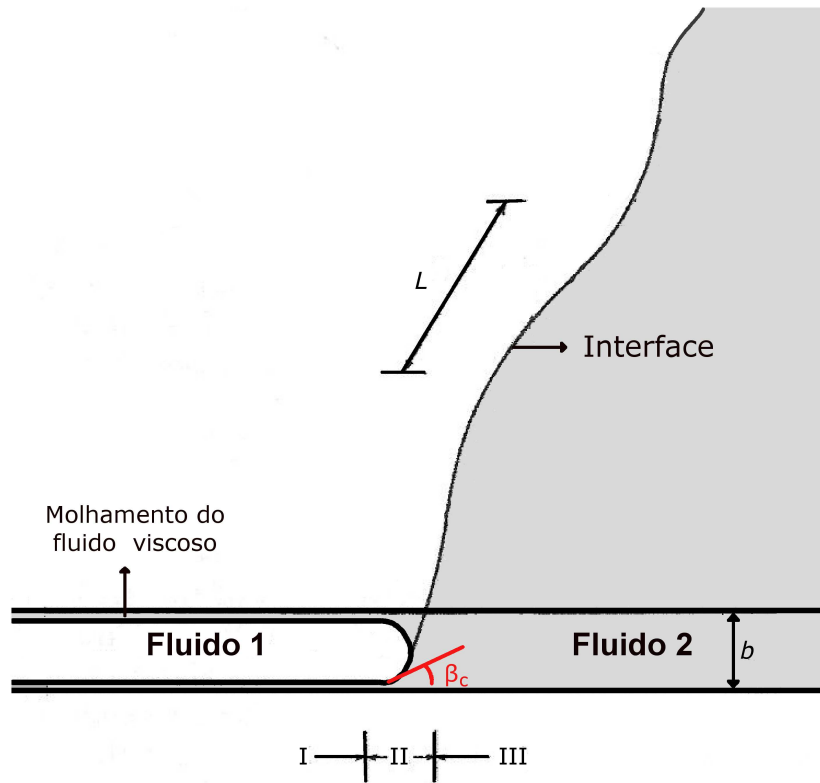


Figura 2.2 Dinâmica da interface com efeito de molhamento: à medida que o fluido 2 é deslocado pelo fluido 1, uma fina camada de fluido 2 fica aderida às paredes da célula. β_c corresponde ao ângulo de contato estático, L é a variação de comprimento lateral e I, II e III representam as regiões mencionadas por Park e Homsy [32]. Figura retirada e adaptada da Ref. [32].

Neste ponto, é importante mencionar que o terceiro termo da Eq. (2.7) foi originalmente proposto por Park e Homsy [32] e sua demonstração é um tanto quanto complicada pois envolve a resolução de um problema de contorno livre. O fluxo na célula de Hele-Shaw, sem tomar médias transversais na velocidade e na pressão, é descrito pela condição de incompressibilidade $\nabla \cdot \mathbf{u}_j = 0$ (onde $\mathbf{u}_j(x, y, z)$ é a velocidade tridimensional do fluido $j = 1, 2$), pela equação de Navier-Stokes simplificada $\nabla P_j = \eta_j \nabla^2 \mathbf{u}_j$ (onde $P_j(x, y, z)$ é a pressão tridimensional do fluido

$j = 1, 2$) e pelas condições de contorno apropriadas mencionadas na Ref. [32]. Quando este conjunto de equações são adimensionalizadas, temos os seguintes parâmetros independentes: $M = \eta_1/\eta_2$ é a razão de viscosidade dos dois fluidos imiscíveis; $\varepsilon = b/L$ é a razão de duas escalas de comprimento b e L , que são, respectivamente, a separação das placas da célula e a variação de comprimento lateral; e o número de capilaridade $Ca = \eta_2 v_n / \sigma$ que, como já comentado anteriormente, representa uma medida relativa entre forças viscosas e tensão superficial. Devido à separação entre as placas da célula (b) ser bastante pequena e o fluxo ser lento, Ca e ε são números muito pequenos.

Os autores da Ref. [32] consideraram que o fluido deslocado molha as paredes da célula, deixando para trás uma fina camada de espessura finita. Nesse contexto, é possível dividir o domínio em três regiões distintas: a região da fina camada de espessura finita constante (região I), a região do menisco (região II) e a região localizada depois do menisco (região III). Na fig. 2.2 mostramos todas essas regiões bem como a atuação do fluido molhante durante seu deslocamento. Na região III, o fluxo assume perfil parabólico e pode ser tratado com a teoria clássica de Hele-Shaw. Na região I, devido à fina camada de fluido aderido às paredes da célula, o problema é resolvido por uma expansão perturbativa em ε e Ca , como foi feito no apêndice da Ref. [4]. Só nos resta saber então a solução na região II, que é obtida por uma dupla expansão assintótica nos parâmetros Ca e ε . Usando as condições de contorno apropriadas nas fronteiras da região I-II e da região II-III, Park e Homsy combinaram as diferentes soluções das regiões I, II e III obtendo assim a diferença de pressão na interface levando em consideração o efeito de molhamento (Eq. 2.7).

É importante mencionar que, para uma dada taxa de injeção, a espessura do filme fino aderido às placas da célula de Hele-Shaw permanece constante na geometria retangular [32, 33, 35–38, 44]. Já na geometria radial, a espessura do filme pode variar pois a mesma é proporcional ao número de capilaridade. O número de capilaridade varia com a velocidade dos dedos $dR/dt = Q/2\pi R$, fazendo com que a espessura diminua na direção radial e que o efeito de molhamento seja cada vez menos expressivo conforme o tempo passa. Apesar disso, no regime fracamente não-linear abordado neste trabalho, ainda é possível observar o efeito de molhamento nos mecanismos responsáveis pela formação de padrões de dedos viscosos. O papel da variação da espessura do filme em uma dinâmica de dedos viscosos completamente não-linear ainda é uma questão em aberto e demandaria intensa simulação computacional bem como experimentos em laboratório.

O nosso problema fica completamente determinado pela equação de movimento da interface (2.6), pela condição de contorno da diferença de pressão (2.7) e pela condição de contorno cinemática, que expressa a continuidade da componente normal da velocidade de cada fluido na interface

$$\frac{\partial \Re}{\partial t} = \left(\frac{1}{r^2} \frac{\partial \Re}{\partial \theta} \frac{\partial \phi_j}{\partial \theta} \right) \Big|_{r=\Re} - \left(\frac{\partial \phi_j}{\partial r} \right) \Big|_{r=\Re}. \quad (2.8)$$

Seguindo a mesma abordagem das Refs. [3, 7], usamos a Eq. (2.8) para obter as amplitudes do potencial de velocidade ϕ_{jn} em termos das amplitudes de perturbação ζ_n . As relações obtidas, juntamente com a condição de diferença de pressão na interface (2.7), são posteriormente substituídas na Eq. (2.6). Mantendo sempre termos até segunda ordem em ζ e usando

a transformada inversa de Fourier, chegamos numa equação de movimento para as amplitudes de perturbação (para $n \neq 0$)

$$\dot{\zeta}_n = \lambda(n)\zeta_n + \sum_{n' \neq 0} \left\{ F(n, n')\zeta_{n'}\zeta_{n-n'} + G(n, n')\dot{\zeta}_{n'}\zeta_{n-n'} + H(n) \left[\dot{\zeta}_{n'}\dot{\zeta}_{n-n'} + \frac{Q}{2\pi R^2}\zeta_{n'}\dot{\zeta}_{n-n'} \right] \right\}, \quad (2.9)$$

onde o pequeno ponto acima das variáveis significa a derivada total no tempo.

$$\lambda(n) = \frac{1}{1+w(n)} \left[\frac{Q}{2\pi R^2}(A|n|-1) - \frac{\pi\sigma b^2(A+1)}{96\eta_2 R^3}|n|(n^2-1) \right], \quad (2.10)$$

é a taxa de crescimento linear e

$$w(n) = \gamma|n|^J \frac{(A+1)}{12} \frac{b}{R} \left(\frac{2\pi R\sigma}{Q\eta_2} \right)^{1-\gamma} \quad (2.11)$$

está relacionado com a contribuição do filme deixado pelo fluido molhante.

Os termos de acoplamento de segunda ordem são

$$\begin{aligned} F(n, n') &= \frac{1}{1+w(n)} \left\{ \frac{|n|}{R} \left[\frac{QA}{2\pi R^2} \left[\frac{1}{2} - \text{sgn}(nn') \right] \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \frac{\pi b^2 \sigma}{48(\eta_1 + \eta_2)R^3} \left[1 - \frac{n'}{2}(3n' + n) \right] \right] - \frac{Qw(n)}{4\pi R^3} n'(n - n') \right\}, \end{aligned} \quad (2.12)$$

$$G(n, n') = \frac{1}{1+w(n)} \left\{ \frac{1}{R} [A|n|[1 - \text{sgn}(nn')] - 1] + \frac{w(n)(1-\gamma)}{2R} \right\}, \quad (2.13)$$

$$H(n) = \frac{w(n)}{1+w(n)} \frac{\pi R}{Q} (1-\gamma), \quad (2.14)$$

onde a função sgn assume valores ± 1 de acordo com o sinal de seu argumento.

As relações (2.9)-(2.14) representam a equação de modos acoplados para o problema dos dedos viscosos em uma célula radial de Hele-Shaw, levando em consideração o efeito de molhamento das placas. Este conjunto de equações não-lineares abre espaço para uma análise do efeito de molhamento tanto na estabilidade quanto na morfologia da interface. Quando $\gamma = 0$ (em vez de $\gamma = 2/3$), as Eqs. (2.9)-(2.14) são reduzidas ao caso originalmente desenvolvido na Ref. [3], onde o efeito de molhamento não foi levado em consideração. Nesse limite, o fator multiplicativo $\pi/4$ que aparece na tensão superficial deve ser substituído por um.

2.3 Efeitos do molhamento

No restante deste capítulo, usaremos as Eqs. (2.9)-(2.14) na análise da evolução temporal da interface em primeira e segunda ordem em ζ . É conveniente escrever a perturbação (2.1) no formato de modos senos e cossenos

$$\zeta(\theta, t) = \zeta_0 + \sum_{n=1}^{\infty} [a_n(t) \cos(n\theta) + b_n(t) \sin(n\theta)], \quad (2.15)$$

sendo $a_n = \zeta_n + \zeta_{-n}$ e $b_n = i(\zeta_n - \zeta_{-n})$ amplitudes reais. Sem perda de generalidade, escolhemos a fase do modo fundamental para que $a_n > 0$ e $b_n = 0$.

Todos os parâmetros relevantes em nossa análise estão consistentes com valores de grandezas físicas presentes em experimentos reais de fluxo radial em célula de Hele-Shaw [1, 3, 9, 34], sendo a maioria dos parâmetros retirados do experimento clássico de Paterson [1]. Consideramos então o crescimento de dedos proveniente da injeção (à taxa constante $Q = 2\pi \text{ cm}^2/\text{s}$) de ar [$\eta_1 \approx 0$] em glicerina [$\eta_2 \approx 5.21 \text{ g}/(\text{cm s})$]. A separação das placas da célula é de $b = 0.15 \text{ cm}$ e a tensão superficial $\sigma = 63 \text{ dyne/cm}$. O raio inicial $R_0 = 1.0 \text{ cm}$ e o tempo final da evolução da interface $t = 6.5 \text{ s}$.

2.3.1 Regime linear

No âmbito da aproximação linear, não é possível tirar conclusões a respeito do efeito de molhamento nos mecanismos de competição e bifurcação de dedos. Apesar disso, apenas analisando a taxa de crescimento linear (2.10) é possível tirar algumas conclusões importantes: tal equação só difere da taxa de crescimento sem molhamento pelo fator $1/(1 + w(n))$, o qual introduz uma dependência explícita em γ . Sendo assim, não é de se esperar que o molhamento altere a banda de modos instáveis, ou seja, modos de Fourier que possuem $\lambda(n) > 0$. Quanto ao modo de crescimento mais rápido n_{max} (obtido por $d\lambda(n)/dn = 0$), note que ele é apenas ligeiramente menor quando o efeito do fluido molhante é incluído (veja Fig. 2.3). Como n_{max} , no regime linear, está diretamente relacionado com o número de dedos presente na interface, também não é de se esperar que o número de dedos na interface mude significativamente na presença do molhamento.

O efeito de maior relevância se torna mais claro quando observamos a Fig. 2.3, na qual o gráfico da taxa de crescimento linear $\lambda(n)$ em função do número de onda n é plotado, no tempo final $t = 6.5 \text{ s}$, para o caso $\gamma = 0$ (sem molhamento) e $\gamma = 2/3$ (com molhamento). Como já foi mencionado, a banda de instabilidade permanece inalterada, enquanto que o n_{max} diminui um pouco. Porém, a magnitude da taxa de crescimento é fortemente alterada na presença do filme molhante. Isto indica que a presença do molhamento estabiliza o crescimento de dedos na interface, ao menos no regime linear.

2.3.2 Regime fracamente não-linear

Nesta seção examinaremos a influência do molhamento nos principais mecanismos não-lineares responsáveis pela formação de padrão de dedos viscosos no problema da injeção: bifurcação e competição dos dedos.

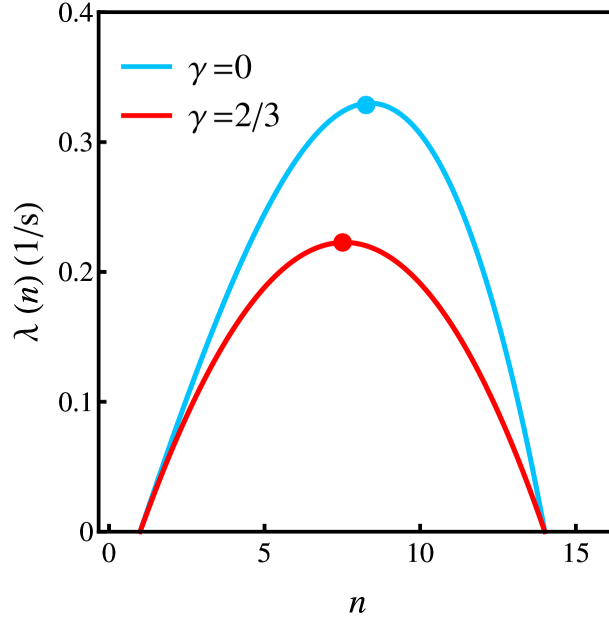


Figura 2.3 Taxa de crescimento linear $\lambda(n)$ em função dos modos n , no tempo $t = 6.5$ s, para o caso sem molhamento ($\gamma = 0$) e com molhamento ($\gamma = 2/3$). O máximo das curvas é indicado por pequenos pontos.

2.3.2.1 Bifurcação de dedos

A bifurcação de dedos está relacionada com a influência do modo fundamental n no crescimento do primeiro harmônico $2n$ [3]. Usando o fato de que $a_n = \zeta_n + \zeta_{-n}$ e $b_n = i(\zeta_n - \zeta_{-n})$, juntamente com a equação de movimento das amplitudes de perturbação (2.9), obtemos as equações de movimento para os modos senos e cossenos do primeiro harmônico:

$$\dot{a}_{2n} = \lambda(2n) a_{2n} + \frac{1}{2} T(2n, n) a_n^2, \quad (2.16)$$

$$\dot{b}_{2n} = \lambda(2n) b_{2n}, \quad (2.17)$$

onde

$$T(2n, n) = \left\{ F(2n, n) + \lambda(n) G(2n, n) + H(2n) \lambda(n) \left[\lambda(n) + \frac{Q}{2\pi R^2} \right] \right\}. \quad (2.18)$$

Pela Eq. (2.17), é possível notar que o crescimento do modo seno b_{2n} não é afetado por a_n e também não apresenta acoplamento de segunda ordem. Em contrapartida, o modo cosseno a_{2n} (veja Eq. (2.16)) possui acoplamento de segunda ordem e é influenciado por a_n . Na Ref. [3], é

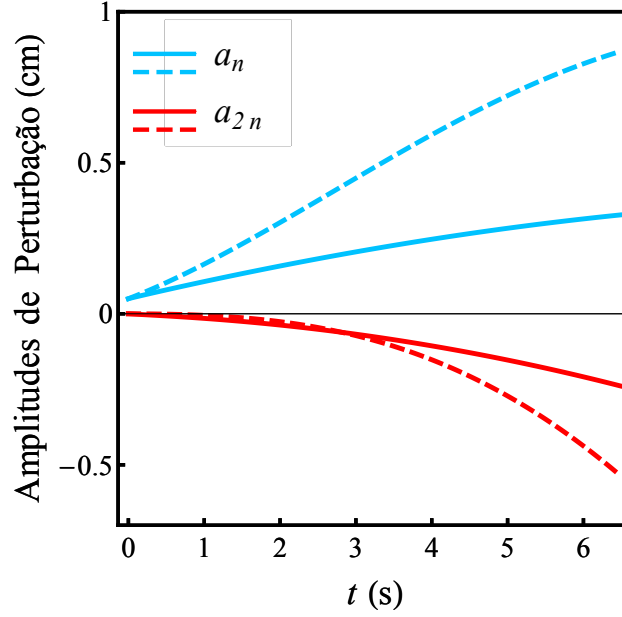


Figura 2.4 Evolução temporal das amplitudes de perturbação dos modos cosenos a_n e a_{2n} . As curvas tracejadas (sólidas) são plotadas para $\gamma = 0$ ($\gamma = 2/3$).

mostrado que, se a_{2n} cresce negativamente, há um favorecimento do alargamento do dedo bem como sua bifurcação.

Para saber como o efeito da fina camada de fluido molhante afeta o crescimento dos modos fundamental a_n e harmônico a_{2n} observe a Fig. 2.4, onde o gráfico da evolução temporal das amplitudes de perturbação dos modos cosenos é plotado. Consideramos a situação em que o efeito de molhamento não está presente ($\gamma = 0$, curvas tracejadas) e na presença do efeito ($\gamma = 2/3$, curvas sólidas). As amplitudes iniciais foram tomadas como sendo $a_n = R_0/20$ e $a_{2n} = 0$. Note que o molhamento diminui a magnitude das amplitudes de perturbação. Para o caso em que o molhamento não é levado em consideração ($\gamma = 0$), o modo harmônico a_{2n} assume valor negativo apesar de começar do zero. Há uma tendência natural do acoplamento não-linear favorecer a divisão do dedo. Na presença do molhamento ($\gamma = 2/3$), a_{2n} ainda assume valor negativo mas com uma magnitude bem menor, apontando assim para uma diminuição na bifurcação do dedo. Uma estabilização não-linear do fenômeno da divisão dos dedos é induzida pelo molhamento.

Na Fig. 2.5, plotamos a evolução temporal das interfaces para os tempos $t=0, 0.5, 1.5, 2.5, 3.5, 4.5, 5.5$ e 6.5 s. Tais interfaces são formadas pela interação de dois modos cosenos (o fundamental $n = 4$ e seu harmônico $2n = 8$) sem levar em consideração o molhamento (a) e levando em consideração (b). As conclusões a respeito do fenômeno da divisão dos dedos ficam ainda mais clara quando analisamos as interfaces: quando o molhamento não é considerado, o padrão formado se assemelha a uma flor, cujas pétalas representam os dedos que claramente bifurcam. A morfologia do padrão resultante, na presença do molhamento, é completamente diferente: os dedos são menores e mais largos, com bifurcação bem menos intensa.

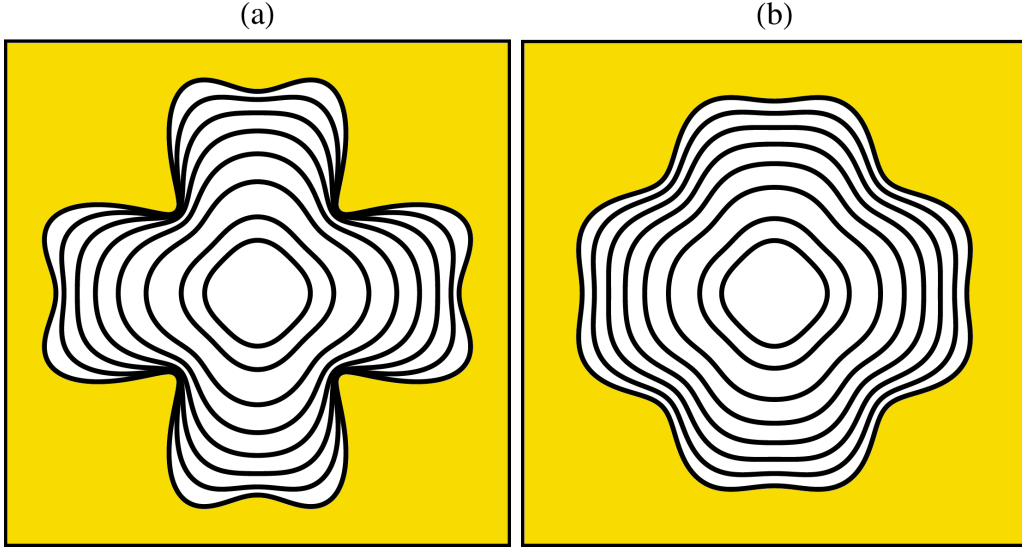


Figura 2.5 Evolução temporal das interfaces resultante da interação de dois modos cossenos $n = 4$ e $2n = 8$: (a) $\gamma = 0$, e (b) $\gamma = 2/3$.

2.3.2.2 Competição de dedos

Depois da análise do mecanismo de bifurcação de dedos, seguiremos o estudo no efeito do molhamento na competição de dedos. De acordo com a Ref. [3], este mecanismo não-linear decorre da variação do comprimento dos dedos e está relacionado com a influência do modo fundamental n , assumindo que n é par, no crescimento do modo sub-harmônico $n/2$. De forma bastante semelhante ao que foi feito na seção anterior, as equações de movimento para os modos senos e cossenos do sub-harmônico:

$$\dot{a}_{n/2} = \{\lambda(n/2) + C(n) a_n\} a_{n/2}, \quad (2.19)$$

$$\dot{b}_{n/2} = \{\lambda(n/2) - C(n) a_n\} b_{n/2}, \quad (2.20)$$

onde

$$C(n) = \frac{1}{2} \left[F\left(-\frac{n}{2}, \frac{n}{2}\right) + \lambda(n/2) G\left(\frac{n}{2}, -\frac{n}{2}\right) \right] + \frac{1}{2} \left[F\left(\frac{n}{2}, n\right) + \lambda(n) G\left(\frac{n}{2}, n\right) \right] \\ + \frac{1}{2} \lambda(n) H(n/2) \left[\lambda(n/2) + \frac{Q}{2\pi R^2} \right] + \frac{1}{2} \lambda(n/2) H(n/2) \left[\lambda(n) + \frac{Q}{2\pi R^2} \right]. \quad (2.21)$$

A ação do modo sub-harmônico é quebrar a simetria rotacional imposta pelo modo fundamental n , alternando entre aumento e diminuição do comprimento de cada um dos n dedos. Na Ref. [3], é mostrado que, para o problema da injeção radial em célula de Hele-Shaw, o modo cosseno $a_{n/2}$ cresce enquanto que o modo seno $b_{n/2}$ decai. Isto resulta numa variação do comprimento entre os dedos do fluido 1, que invadem e deslocam o fluido 2 molhante.

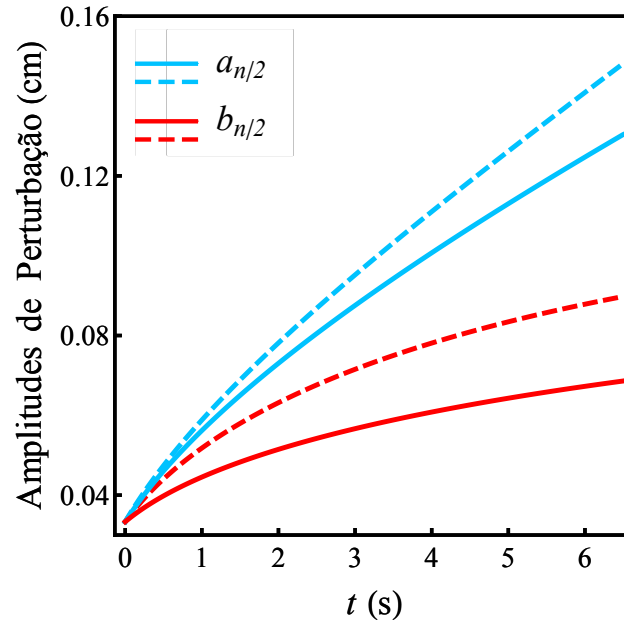


Figura 2.6 Evolução temporal das amplitudes de perturbação do modo cosseno $a_{n/2}$ e seno $b_{n/2}$. As curvas tracejadas (sólidas) são plotadas para $\gamma = 0$ ($\gamma = 2/3$).

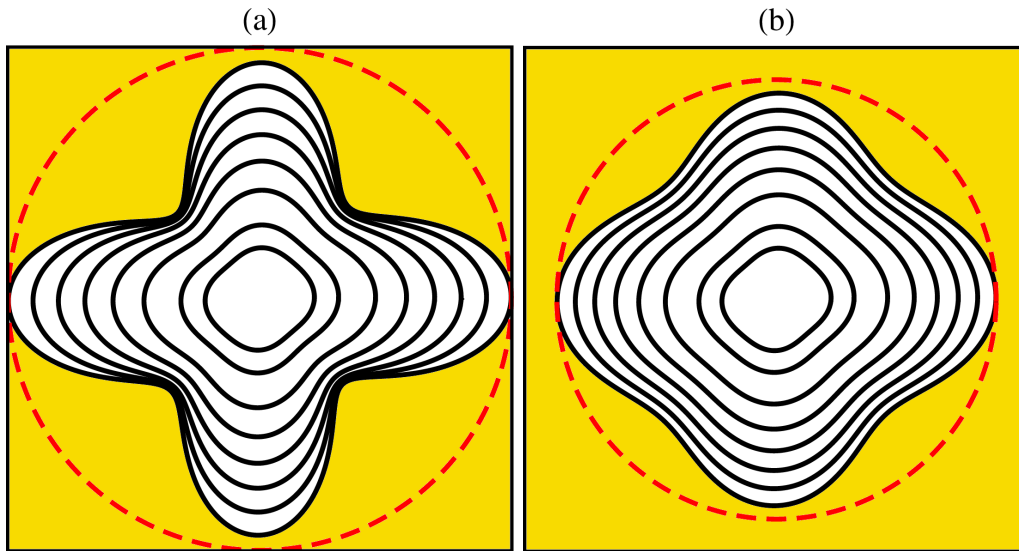


Figura 2.7 Evolução temporal das interfaces resultante da interação de dois modos $n = 4$ e $n/2 = 2$ (ambos senos e cossenos) para (a) $\gamma = 0$, e (b) $\gamma = 2/3$. Os tempos usados para plotar cada uma das interfaces foram os mesmos da Fig. 2.5. Os círculos tracejados foram adicionados para facilitar a visualização da competição entre os dedos do fluido 1.

O papel do molhamento pode ser melhor compreendido se analisarmos a Fig. 2.6, onde o gráfico da evolução temporal das amplitudes de perturbação cosseno $a_{n/2}$ e seno $b_{n/2}$ do modo sub-harmônico é plotado. O efeito de molhamento é ignorado para $\gamma = 0$ (curvas tracejadas) e levado em consideração para $\gamma = 2/3$ (curvas sólidas). Os valores iniciais das amplitudes são $a_{n/2} = b_{n/2} = R_0/30$ e $a_n = R_0/20$, valores escolhidos tendo em mente que a variedade do comprimento dos dedos depende da magnitude relativa das amplitudes seno e cosseno do modo sub-harmônico. Na Fig. 2.6, vemos que há um maior crescimento de $a_{n/2}$ em relação ao $b_{n/2}$ quando $\gamma = 0$, indicando assim uma competição entre os dedos provenientes do fluido interno 1, exatamente de acordo com a Ref. [3]. O comportamento é semelhante quando o molhamento é levado em consideração ($\gamma = 2/3$) mas note que há uma diminuição da magnitude de ambos os modos $a_{n/2}$ e $b_{n/2}$ (as curvas sólidas estão localizadas abaixo das tracejadas). Na seção anterior também verificamos que o modo fundamental a_n possui menor magnitude na presença do molhamento. Isto indica que não só o tamanho, mas também a competição de dedos é diminuída devido à fina camada de fluido molhante. Todas essas conclusões ficam mais claras na Fig. 2.7, onde a evolução temporal das interfaces é plotada. A Fig. 2.7(a) é plotada sem o efeito de molhamento, resultando assim em um padrão no qual os dedos crescem com diferentes comprimentos e competem entre si. Já na Fig. 2.7(b), verificamos que o molhamento induz a um menor crescimento de dedos e o padrão resultante apresenta dedos mais largos e com certa competição.

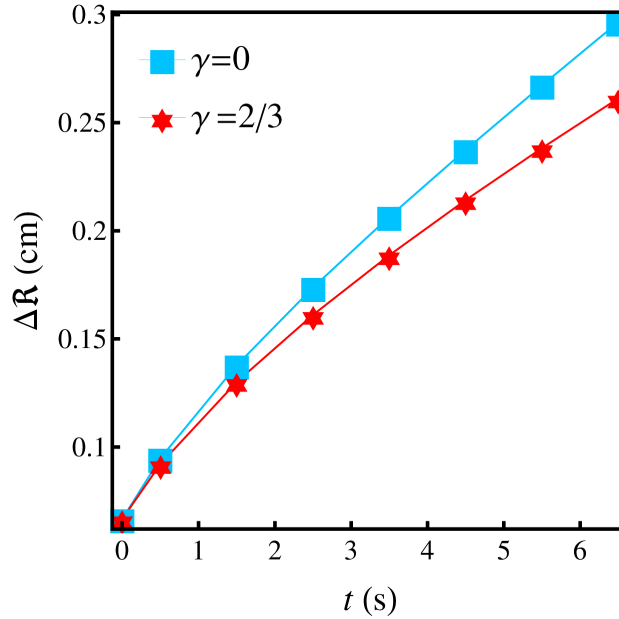


Figura 2.8 Diferença entre o comprimento de dedos consecutivos $\Delta\mathfrak{R}$ do fluido 1 em função do tempo, para $\gamma = 0$ e $\gamma = 2/3$. Esta figura usa os mesmos parâmetros físicos das Figs. 2.6 e 2.7. É evidente que a competição entre os dedos é diminuída pela camada de fluido molhante.

Uma visão mais quantitativa entre a competição dos dedos é mostrada na Fig. 2.8, na qual plotamos a diferença de comprimento entre dedos consecutivos $\Delta\mathfrak{R}$ do fluido 1 em função do

tempo, para os tempos usados na Fig. 2.7. Como sempre, $\gamma = 0$ não leva em consideração o molhamento enquanto que $\gamma = 2/3$ o efeito está presente. Fica claro que a competição de dedos é de fato diminuída pelo molhamento.

No próximo capítulo continuaremos a estudar o efeito de molhamento. No entanto, vamos considerar o problema do levantamento em célula de Hele-Shaw radial. Assim como no presente capítulo, veremos que o molhamento provocará sensíveis mudanças na morfologia e nos mecanismos não-lineares presentes na formação de padrões do levantamento.

Célula de Hele-Shaw com espaçamento dependente do tempo

3.1 Introdução

Já é um fato bem estabelecido que o efeito de molhamento é de grande importância na formação de padrões resultantes de instabilidades hidrodinâmicas [46–49]. Em particular, como mostrado no capítulo anterior, o molhamento teve uma importante influência nos mecanismos de competição e bifurcação de dedos no problema da injeção em célula de Hele-Shaw radial. Neste caso, o padrão resultante tradicional em formato de "ventilador" [1, 3, 50–52], o qual apresenta dedos que competem e bifurcam, foi substituído por dedos mais largos e de comprimentos semelhantes quando o molhamento foi levado em consideração [39].

Um outro sistema que tem sido estudado nos últimos quinze anos é o problema da célula de Hele-Shaw com espaçamento variável, conhecido também como problema de "levantamento" [11]. Diferentemente do problema da injeção tradicional, o problema do levantamento consiste em mover a placa superior da célula de Hele-Shaw, de forma que o espaçamento entre as placas seja dependente do tempo. Conforme as placas se separam, a pressão torna-se menor no fluido interno de maior viscosidade, enquanto que o fluido externo começa a invadir o espaço interno da célula. A interface entre os dois fluidos rapidamente se deforma, dando origem a padrões bem peculiares [12–18]. O principal mecanismo não-linear na formação desses padrões é a competição entre os dedos do fluido externo menos viscoso. Vale ressaltar que os dedos invasores (provenientes do fluido externo) são tipicamente mais largos do que os dedos que apontam para fora (fluido interno).

Apesar da grande quantidade de trabalhos envolvendo levantamento em célula de Hele-Shaw (veja Ref. [11–18]), a influência do filme fino de fluido molhante na competição dos dedos e no formato, tanto dos dedos internos (invasores) quanto dos externos (que apontam para fora), ainda não foi explorada. Apenas alguns grupos investigaram o papel do molhamento no problema do levantamento [16, 53, 54]: a dinâmica, a nível linear, foi teoricamente estudada nas Refs. [16, 53], enquanto que na Ref. [54] o papel do molhamento e de outros substratos foi analisado experimentalmente em tempos avançados na formação dos padrões. Nas Refs. [16, 53], a análise de estabilidade linear foi feita para mostrar que o molhamento permite uma melhor concordância na previsão teórica do número de dedos que surgem durante o processo de levantamento. Dessa forma, o efeito de molhamento nos mecanismos não-lineares responsáveis pela competição e morfologia individual de cada dedo não pôde ser acessado. Neste capítulo, usaremos novamente uma abordagem perturbativa fracamente não-linear no problema do levantamento em célula de Hele-Shaw, a qual permitirá um estudo analítico mais detalhado do

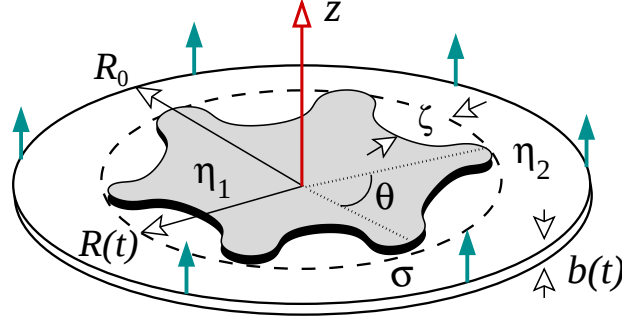


Figura 3.1 Desenho esquemático do problema do levantamento em célula de Hele-Shaw.

efeito de molhamento nas estruturas decorrentes da instabilidade.

Neste ponto, é importante comentar que no capítulo anterior investigamos o efeito da fina camada de fluido molhante no problema da injeção em célula de Hele-Shaw com espaçamento constante [39], enquanto que no presente capítulo analisaremos o problema da célula de Hele-Shaw com espaçamento dependente do tempo. É um fato bem estabelecido que a morfologia dos padrões não-lineares resultantes destas duas configurações são completamente diferentes. Fenômenos como bifurcação de dedos, muito frequentes no problema da injeção, desaparecem por completo no levantamento [12–18]. O campo de pressão, que é Laplaciano no problema da injeção, torna-se Poissoniano no levantamento [11]. A própria natureza não-linear de ambos os sistemas não permite, *a priori*, fazer previsões sobre possíveis similaridades do comportamento dos sistemas na presença do fluido molhante.

3.2 Análise fracamente não-linear

O sistema estudado consiste de uma célula de Hele-Shaw radial com espaçamento dependente do tempo $b(t)$, onde há dois fluidos: o fluido 1, interno e de viscosidade η_1 , cercado pelo fluido 2, externo e de viscosidade η_2 (veja Fig. 3.1). Ambos são newtonianos e imiscíveis, com uma tensão superficial σ entre eles. Aqui, $\eta_1 > \eta_2$ e a placa superior pode ser levantada na direção perpendicular às placas (eixo z), enquanto que a placa inferior permanece fixa. Inicialmente, a interface entre os fluidos é circular, com um raio inicial $R_0 = R(t=0)$ e espaçamento $b_0 = b(t=0)$. Pela conservação de volume ($\pi b(t)R(t)^2 = \pi b_0 R_0^2$), o raio da interface não-perturbada é dado por

$$R(t) = R_0 \sqrt{\frac{b_0}{b(t)}}. \quad (3.1)$$

Conforme o processo de levantamento ocorre, o fluido externo, de menor viscosidade, invade o fluido interno, de maior viscosidade. Nesse contexto, a instabilidade de Saffman-Taylor é responsável pela deformação da interface entre os fluidos. Assim como no capítulo anterior, a interface perturbada é descrita por $\mathfrak{R}(\theta, t) = R(t) + \zeta(\theta, t)$, sendo θ o ângulo azimutal. A perturbação $\zeta(\theta, t)$ é representada por uma série de Fourier $\zeta(\theta, t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \zeta_n(t) \exp(in\theta)$, onde

$\zeta_n(t)$ são as amplitudes de Fourier e n são números de onda discretos. Nossa teoria perturbativa considera termos até segunda ordem em ζ e, assim como feito nas Refs. [32, 35–38, 42–44, 55], consideramos o fluido 1 como sendo molhante, enquanto que o fluido 2 é não-molhante.

O fluxo no problema do levantamento em célula de Hele-Shaw é regido por duas equações: a Lei de Darcy bidimensional [4, 34]

$$\mathbf{v}_j = -\frac{b^2(t)}{12\eta_j} \nabla p_j, \quad (3.2)$$

e a condição de incompressibilidade [11]

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_j = -\frac{\dot{b}(t)}{b(t)}. \quad (3.3)$$

Na Eq. (3.2), $\mathbf{v}_j = \mathbf{v}_j(r, \theta)$ e $p_j = p_j(r, \theta)$ representam as médias transversais (ao longo do eixo z) da velocidade e da pressão nos fluidos $j = 1, 2$, respectivamente. O termo $\dot{b}(t) = db(t)/dt$, presente na Eq. (3.3), representa a velocidade de levantamento da placa superior. Como na maioria dos trabalhos teóricos e experimentais [12–18], consideramos uma velocidade de levantamento constante $\dot{b}(t) = \dot{b} = V$ de forma que $b(t) = b = b_0 + Vt$.

Apesar da natureza tridimensional do problema, é importante mencionar que a velocidade de levantamento V não é rápida o bastante para introduzir algum efeito inercial. O espaçamento entre as placas $b(t)$ é sempre bem menor do que o raio da interface não-perturbada $R(t)$, de forma que $R(t)/b(t) \gg 1$ e o sistema permanece com um alto confinamento [11, 53]. Este regime é exatamente o mesmo estudado em laboratórios nos problemas de levantamento em célula de Hele-Shaw [12–18]. Neste sentido, se justifica o uso da Lei de Darcy bidimensional para descrever o problema. A validade da Lei de Darcy bidimensional torna-se ainda mais clara pela similaridade entre simulações numéricas empregando esta lei, com os padrões interfaciais obtidos experimentalmente [11, 17, 18]. Nestes trabalhos, o modelo da Lei de Darcy descreveu de forma satisfatória a evolução dos padrões de dedos viscosos na fase inicial, intermediária e completamente não-linear.

Devido ao fluxo ser irrotacional ($\nabla \times \mathbf{v}_j = 0$), definimos o potencial de velocidade ϕ_j de forma que $\mathbf{v}_j = -\nabla \phi_j$. Pela condição de incompressibilidade (3.3), vemos que ϕ_j obedece à equação de Poisson $\nabla^2 \phi_j = \dot{b}/b$, tendo como solução

$$\phi_j(r, \theta) = \frac{\dot{b}r^2}{4b} + \sum_{n \neq 0} \phi_{jn}(t) \left(\frac{r}{R}\right)^{(-1)^{(j+1)|n|}} e^{in\theta}. \quad (3.4)$$

Seguindo a abordagem cuidadosamente desenvolvida no capítulo anterior, aplicamos a condição de contorno cinemática [1, 34]

$$\frac{\partial \Re}{\partial t} = \left(\frac{1}{r^2} \frac{\partial \Re}{\partial \theta} \frac{\partial \phi_i}{\partial \theta} \right) \Big|_{r=\Re} - \left(\frac{\partial \phi_i}{\partial r} \right) \Big|_{r=\Re} \quad (3.5)$$

para expressar as amplitudes do potencial de velocidade ϕ_{jn} em termos das amplitudes de perturbação ζ_n .

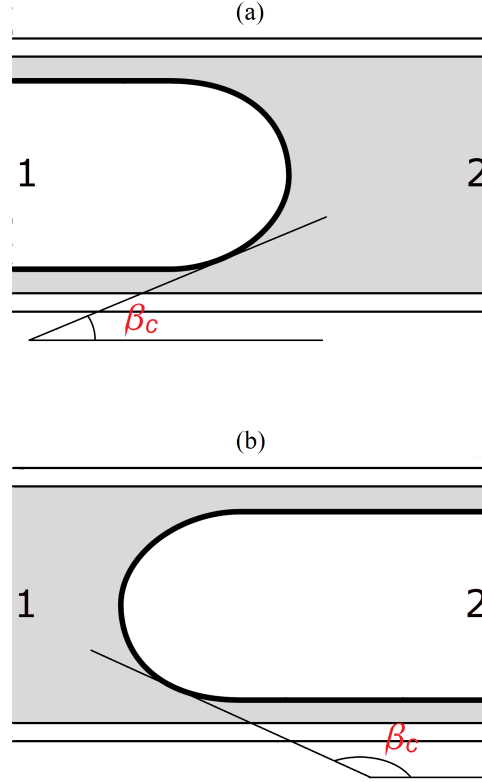


Figura 3.2 Menisco do perfil da interface nas situações: (a) Injeção e (b) Levantamento. β_c é o ângulo de contato estático medido entre as placas e o menisco do perfil da interface. Assumindo que o perfil seja circular, temos $\beta_c = 0$ em (a) e $\beta_c = \pi$ em (b).

A contribuição da tensão superficial e da fina camada de fluido molhante são inseridas pela diferença de pressão na interface, dada pela equação de Young-Laplace generalizada [32, 35–39, 42–45, 55]

$$(p_1 - p_2)|_{r=\Re} = \frac{\pi}{4} \sigma \kappa + \frac{2\sigma}{b} \cos \beta_c [1 + JCa^\gamma]. \quad (3.6)$$

No problema da injeção na célula de Hele-Shaw radial, caso estudado no capítulo anterior, consideramos que o fluido 1 deslocava o fluido molhante 2, de forma que o ângulo de contato estático era $\beta_c = 0$. O processo, no problema do levantamento, ocorre de forma inversa: o fluido 2 desloca o fluido molhante 1, fazendo com que o ângulo de contato seja $\beta_c = \pi$ (veja Fig. 3.2).

Tendo em mãos a condição de pressão na interface (3.6) e ϕ_j em termos das amplitudes de perturbação ζ_n , podemos substituí-los na Lei de Darcy (3.2) e usar a transformada inversa de Fourier. Mantendo sempre termos até segunda ordem em ζ , chegamos na equação de movimento para as amplitudes de perturbação (para $n \neq 0$)

$$\dot{\zeta}_n = \lambda(n)\zeta_n + \sum_{n' \neq 0} \left\{ F(n, n')\zeta_{n'}\zeta_{n-n'} + G(n, n')\dot{\zeta}_{n'}\zeta_{n-n'} + H(n) \left[\dot{\zeta}_{n'}\dot{\zeta}_{n-n'} + \frac{\dot{b}}{2b}\zeta_{n'}\dot{\zeta}_{n-n'} \right] \right\}, \quad (3.7)$$

onde

$$\lambda(n) = \frac{1}{1+w(n)} \left[-\frac{\dot{b}}{2b}(1+A|n|) - \frac{\pi\sigma b^2(1-A)}{96\eta_1 R^3}|n|(n^2-1) \right], \quad (3.8)$$

é a taxa de crescimento linear, $A = (\eta_2 - \eta_1)/(\eta_2 + \eta_1)$ é o contraste de viscosidade, e

$$w(n) = \gamma|n|J^{\frac{(1-A)}{12}} \frac{b}{R} \left(\frac{2b\sigma}{\dot{b}\eta_1 R} \right)^{1-\gamma} \quad (3.9)$$

está relacionado com a contribuição do filme de fluido molhante.

Os termos de acoplamento de segunda ordem são

$$\begin{aligned} F(n, n') = & \frac{1}{1+w(n)} \left\{ \frac{|n|}{R} \left[\frac{A\dot{b}}{2b} \left[\frac{1}{2} - \text{sgn}(nn') \right] \right. \right. \\ & \left. \left. - \frac{\pi b^2 \sigma (1-A)}{96\eta_1 R^3} \left[1 - \frac{n'}{2}(3n' + n) \right] - \frac{\dot{b}}{2b} \frac{1}{|n|} \right] + \frac{\dot{b}}{2b} \frac{w(n)}{2R} n'(n-n') \right\}, \end{aligned} \quad (3.10)$$

$$G(n, n') = \frac{1}{1+w(n)} \left\{ \frac{1}{R} [A|n|[1 - \text{sgn}(nn')] - 1] - \frac{w(n)(\gamma-1)}{2R} \right\}, \quad (3.11)$$

e

$$H(n) = \frac{w(n)}{1+w(n)} \frac{b}{\dot{b}R} (\gamma-1), \quad (3.12)$$

onde a função sgn assume valores ± 1 dependendo do sinal de seu argumento.

Este conjunto de equações não-lineares (3.7)-(3.12) abre espaço para uma investigação analítica do efeito de molhamento na morfologia da interface entre os fluidos. O caso particular $\gamma = 0$ reproduz a situação na qual o molhamento não é considerado. Neste caso, recuperamos a taxa de crescimento linear previamente desenvolvida na literatura [11, 16].

3.3 Influência do molhamento na morfologia da interface

Para analisar a ação da fina camada de filme molhante na morfologia da interface fluido-fluido, usaremos nossa abordagem fracamente não-linear até segunda ordem em ζ . Como veremos mais adiante, a teoria fracamente não-linear nos dará não só informações quanto a morfologia da interface, mas também será de grande utilidade na investigação da competição e no formato

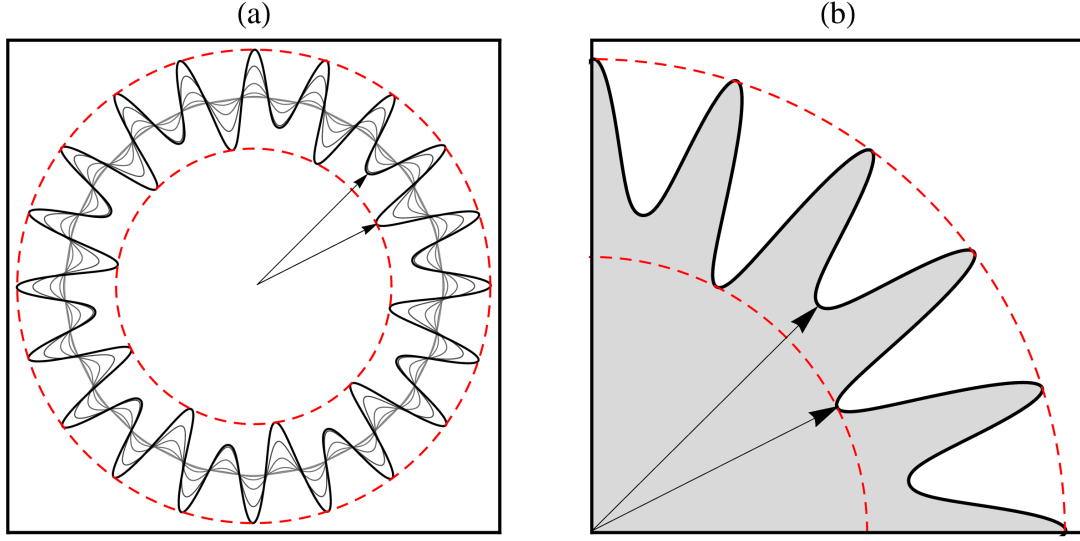


Figura 3.3 (a) Evolução temporal, quando o molhamento não é levado em consideração ($\gamma = 0$), das interfaces resultantes da interação dos modos fundamental n , sub-harmônico $n/2$ e primeiro harmônico $2n$. As interfaces são plotadas para intervalos de tempo iguais e cores mais escuras significam tempos maiores. As curvas tracejadas foram adicionadas para destacar a competição dos dedos, enquanto que as setas indicam a posição radial dos dedos invasores provenientes do fluido 2 (externo). (b) Interface resultante ampliada (setor angular $0 \leq \theta \leq \pi/2$).

individual de cada dedo. Podemos escrever a perturbação da interface usando modos senos e cossenos

$$\zeta(\theta, t) = \zeta_0 + \sum_{n=1}^{\infty} [a_n(t) \cos(n\theta) + b_n(t) \sin(n\theta)], \quad (3.13)$$

sendo $a_n = \zeta_n + \zeta_{-n}$ e $b_n = i(\zeta_n - \zeta_{-n})$ amplitudes reais. A fase do modo fundamental foi escolhida de forma que $a_n > 0$ e $b_n = 0$.

Para manter a presente análise teórica mais próxima possível da realidade experimental do problema de levantamento em célula de Hele-Shaw, usaremos valores de parâmetros físicos retirados de experimentos em laboratório [11–18]. Na tabela 1 da Ref. [18], há uma série de valores típicos para os parâmetros relevantes no problema de levantamento. Nesta análise, consideramos o crescimento de dedos no caso mais instável possível ($A \rightarrow -1$): o ar [$\eta_2 \approx 0$] deslocando um fluido de alta viscosidade, como óleo de silicone [$\eta_1 \approx 100$ Pa s]. O espaçamento inicial entre as placas é de $b_0 = 50 \mu\text{m}$ e o valor da tensão superficial entre os fluidos $\sigma = 0.02$ N/m. O raio inicial do fluido interno é $R_0 = 3.0 \times 10^{-3}$ m, a velocidade de levantamento $V = 2.5 \mu\text{m/s}$ e as interfaces evoluíram até um tempo final de $t = 19$ s.

Em um popular artigo de revisão, Homsy [34] identificou que os principais mecanismos responsáveis pelo crescimento de dedos viscosos no problema da injeção em célula de Hele-Shaw eram competição e bifurcação. Miranda e Widom [3, 7], há algum tempo, mostraram que esses mecanismos responsáveis pela formação de padrões complexos poderiam ser devidamente

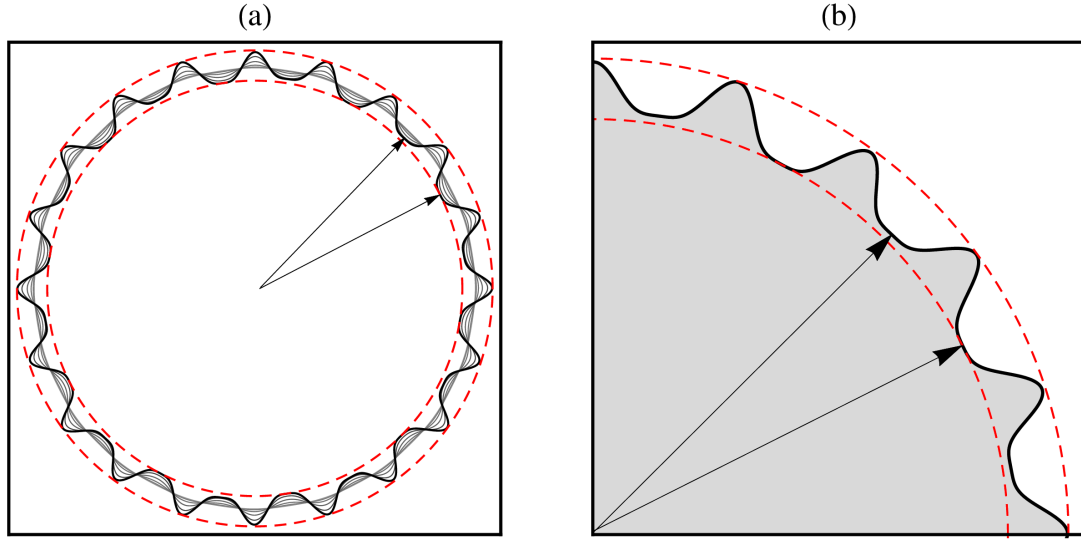


Figura 3.4 (a) Evolução temporal, quando o molhamento é levado em consideração ($\gamma = 2/3$), das interfaces resultantes da interação dos modos fundamental n , sub-harmônico $n/2$ e primeiro harmônico $2n$. As interfaces são plotadas para intervalos de tempo iguais e cores mais escuras significam tempos maiores. As curvas tracejadas foram adicionadas para destacar a competição dos dedos, enquanto que as setas indicam a posição radial dos dedos invasores provenientes do fluido 2 (externo). (b) Interface resultante ampliada (setor angular $0 \leq \theta \leq \pi/2$).

reproduzidos considerando o acoplamento fracamente não-linear de apenas alguns modos: a competição de dedos (ou variação do comprimento dos dedos) pode ser descrita pela interação do modo fundamental n com seu sub-harmônico $n/2$, enquanto que o formato dos dedos (alargamento e estreitamento) é regido pelo modo fundamental n e seu primeiro harmônico $2n$. Fazendo-se uso desse simples modelo, é possível analisar a morfologia e também aspectos não-lineares nos padrões gerados no problema do levantamento em célula de Hele-Shaw.

As Fig. 3.3 ($\gamma = 0$, sem molhamento) e 3.4 ($\gamma = 2/3$, com molhamento) são plotadas considerando o acoplamento simultâneo dos modos de Fourier $n = 20$, $n/2 = 10$ e $2n = 40$. Os valores das amplitudes iniciais são $a_n(0) = R_0/1000$, $a_{n/2}(0) = b_{n/2}(0) = R_0/3000$ e $a_{2n}(0) = 0$. Tanto na Fig. 3.3 (a) quanto na Fig. 3.4 (a), as interfaces são plotadas para $0 \leq t \leq 19$ s, em intervalos de tempo iguais $\Delta t = 3.8$ s. Para uma melhor visualização dos detalhes da morfologia, plotamos em (b) (Fig. 3.3 e 3.4) uma seção das interfaces (setor angular $0 \leq \theta \leq \pi/2$) no tempo final $t = 19$ s. A única diferença entre as figuras é que na Fig. 3.3 o molhamento não é considerado, enquanto que na Fig. 3.4 o molhamento é levado em consideração.

Vale lembrar que os valores iniciais de amplitudes de perturbação usados nos padrões das Fig. 3.3 e 3.4 foram selecionados de forma que as amplitudes para os sub-harmônicos $a_{n/2}$ e $b_{n/2}$, responsáveis pela variação no comprimento de dedos, e primeiro harmônico a_{2n} , responsável pelo alargamento e estreitamento dos dedos, sejam consideravelmente menores do que a amplitude do modo fundamental a_n . Portanto $a_n(0) > a_{n/2}(0) = b_{n/2}(0)$, e $a_n(0) > a_{2n}(0) = 0$. As amplitudes iniciais dos modos sub-harmônicos seno e cosseno são iguais para evitar qual-

quer crescimento preferencial de um desses modos, enquanto que o modo cosseno do primeiro harmônico é escolhido como sendo zero para que seu crescimento e sua fase sejam regidas pela própria dinâmica do sistema. O modo fundamental n basicamente estabelece a simetria rotacional inicial do padrão. Neste sentido, os fenômenos de competição, alargamento e estreitamento de dedos são espontaneamente induzidos pela dinâmica fracamente não-linear, sem que haja nenhuma escolha artificial de grandes amplitudes iniciais para $a_{n/2}$, $b_{n/2}$ e a_{2n} . Na verdade, qualquer combinação de amplitudes iniciais, desde que satisfaça às condições citadas anteriormente, resultarão em padrões semelhantes.

Começamos nossa discussão pela Fig. 3.3 (a), onde o efeito de molhamento não é considerado ($\gamma = 0$): é possível verificar que os dedos invasores, provenientes do fluido externo, apresentam diferentes comprimentos, indicando uma certa competição entre eles. Perceba que alguns destes dedos tocam na linha tracejada interna, enquanto que outros não. Por outro lado, os dedos que apontam para fora, pertencentes ao fluido interno, não apresentam o fenômeno da competição, ou seja, todos eles tocam a linha tracejada externa, exibindo assim um mesmo comprimento. Portanto fica claro que, sem molhamento, o padrão de dedos viscosos resultante é semelhante a uma estrela, claramente instável e apresentando competição entre os dedos invasores, como indicado pelas setas na Fig. 3.3 (a).

Tomando agora a Fig. 3.3 (b) como referência, temos um "zoom" da interface final ($t = 19$ s). Note que os dedos invasores do fluido menos viscoso são um pouco mais largos do que os dedos que apontam para fora. Os aspectos não-lineares revelados pela Fig. 3.3 (grande competição entre dedos invasores e alargamento dos mesmos) estão em acordo qualitativo com os experimentos e simulações de levantamento em célula de Hele-Shaw realizados para tempos mais avançados [11–18]. No entanto, apesar dos experimentos e simulações numéricas mostrarem a grande variação no comprimento de dedos, também exibem o fato de que os dedos invasores são bem mais largos do que os dedos que apontam para fora.

Na Fig. 3.4, observamos em (a) a evolução temporal da interface e em (b), um "zoom" do padrão final resultante quando o molhamento é levado em consideração ($\gamma = 2/3$). Todos os parâmetros físicos (com exceção de γ) e condições iniciais usados para obter a Fig. 3.4 são os mesmos utilizados na Fig. 3.3. Olhando para Fig. 3.4 (a), é visível que a evolução temporal da interface, na presença do filme molhante, é bem diferente da evolução quando o molhamento não é considerado (Fig. 3.3 (a)). O primeiro ponto a se comentar é que, como revelado pelas setas, a variação do comprimento dos dedos invasores é menor do que a variação encontrada na situação sem molhamento. No entanto, apesar de ser menor que na situação anterior (sem molhamento), a competição entre os dedos invasores ainda ocorre. Note que a influência dos mecanismos responsáveis pela morfologia do padrão (competição e alargamento dos dedos invasores), tanto na Fig. 3.3 quanto na Fig. 3.4, ainda é muito pequena quando comparada a experimentos [11–18]. Isto não é nenhuma surpresa, uma vez que nossa teoria perturbativa fracamente não-linear captura apenas os efeitos não-lineares em tempos iniciais da dinâmica.

A estrutura final ilustrada na Fig. 3.4 (b) é bastante diferente da estrutura instável e semelhante a uma estrela, obtida na Fig. 3.3 (b). Observamos que esse novo padrão obtido é muito mais estável, apresentando dedos bem pequenos. Os dedos invasores são evidentemente mais largos que os dedos que apontam para fora e, nesse contexto, há um maior acordo qualitativo com os resultados das Refs. [11–18] em relação ao caso sem molhamento. Quando o efeito

de molhamento é considerado, acabamos com um padrão que exibe (apesar de pequena) competição entre os dedos invasores, os quais são nitidamente mais largos do que os dedos que apontam para fora. Através da análise das Figs. 3.3 e 3.4, podemos dizer que a dinâmica de formação de padrões no levantamento em célula de Hele-Shaw é bastante sensível aos efeitos da camada de fluido molhante, resultando em estruturas de morfologias diferentes.

Infelizmente, não há como comparar quantitativamente nossas interfaces fracamente não-lineares (Figs. 3.3 e 3.4) com os padrões equivalentes resultantes de experimentos e simulações. A razão para isso é que os experimentos e simulações numéricas, em sua maioria, focam no estudo de estágios completamente não-lineares, nos quais o tamanho dos dedos é muito grande e de formato consideravelmente complexo. Para um melhor entendimento deste fato, veja Fig. 3 de um recente experimento de levantamento em célula de Hele-Shaw [18]: em $t' = 25$ uma interface não-linear já se estabeleceu, enquanto que para $t' = 10$ ainda se observa uma estrutura pouco perturbada (onde ainda é possível aplicar uma análise de estabilidade linear). Neste contexto, um regime fracamente não-linear poderia ser encontrado em $10 < t' < 25$, mas não é mostrado. Tudo o que foi falado também se aplica para simulações numéricas (veja Fig. 3 da Ref. [17]). Nossa análise fracamente não-linear é válida para tempos onde a perturbação ζ seja significativamente menor do que o raio não-perturbado correspondente $R(t)$. Apesar de todas as limitações, nosso método ainda captura os principais eventos da dinâmica fortemente não-linear, ou seja, competição e alargamento da ponta dos dedos invasores. Nas próximas duas subseções, discutiremos de uma forma mais quantitativa os mecanismos de modos acoplados responsáveis pela morfologia não-linear ilustrada nas Figs. 3.3 e 3.4.

3.3.1 Competição de dedos

Competição de dedos é um mecanismo não-linear relacionado com a variação dos comprimentos de cada dedo. Como vimos na seção anterior, este mecanismo tem grande influência na formação dos padrões, manifestando-se principalmente nos dedos invasores do fluido externo. No capítulo 2 mostramos que tal mecanismo era descrito pelo papel do modo fundamental n , assumindo n par, no crescimento do seu sub-harmônico $n/2$. As equações de movimento para os modos sub-harmônicos podem ser escritas como

$$\dot{a}_{n/2} = \{\lambda(n/2) + C(n, t)\} a_{n/2}, \quad (3.14)$$

$$\dot{b}_{n/2} = \{\lambda(n/2) - C(n, t)\} b_{n/2}, \quad (3.15)$$

onde

$$\begin{aligned} C(n, t) = & \left\{ \frac{1}{2} \left[F\left(-\frac{n}{2}, \frac{n}{2}\right) + \lambda(n/2) G\left(\frac{n}{2}, -\frac{n}{2}\right) \right] + \frac{1}{2} \left[F\left(\frac{n}{2}, n\right) + \lambda(n) G\left(\frac{n}{2}, n\right) \right] \right. \\ & \left. + \frac{1}{2} \lambda(n) H(n/2) \left[\lambda(n/2) + \frac{\dot{b}}{2b} \right] + \frac{1}{2} \lambda(n/2) H(n/2) \left[\lambda(n) + \frac{\dot{b}}{2b} \right] \right\} a_n. \end{aligned} \quad (3.16)$$

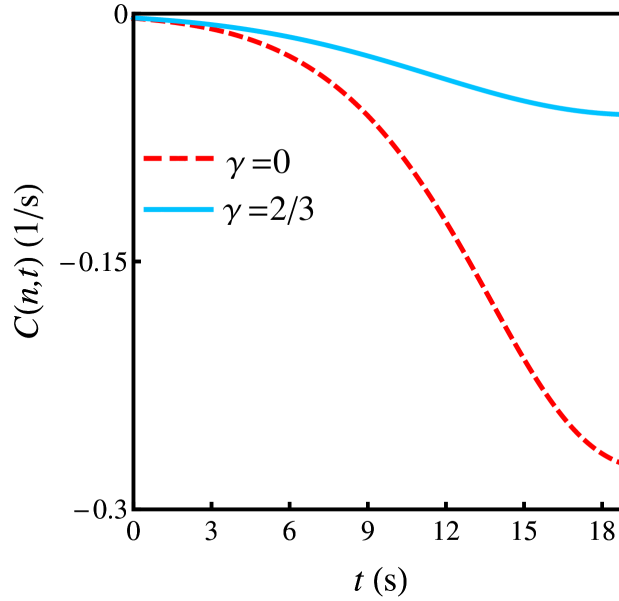


Figura 3.5 Evolução temporal da função competição $C(n,t)$ sem considerar o molhamento ($\gamma=0$, curva tracejada), e considerando o efeito de fluido molhante ($\gamma=2/3$, curva sólida).

Observando as Eqs. (3.14) e (3.15), lembrando que $a_n > 0$, verificamos que há um crescimento do modo sub-harmônico cosseno $a_{n/2}$ se $C(n,t) > 0$, enquanto que o modo sub-harmônico seno $b_{n/2}$ decai. Isto resulta numa variação de comprimento dos dedos, provenientes do fluido 1, que apontam para fora. Esta é a exata situação estudada no capítulo 2, onde os dedos do fluido 1, injetado a uma taxa constante Q , penetram o fluido 2.

Uma vez que o sinal da função $C(n,t)$ muda, toda a conclusão anterior altera-se: se $C(n,t) < 0$, há uma tendência de crescimento do modo sub-harmônico seno $b_{n/2}$, enquanto que o modo sub-harmônico cosseno $a_{n/2}$ decai. Nessa situação, os dedos invasores do fluido 2 competem, exibindo uma variação de comprimento. Além de seu sinal, a magnitude da função $C(n,t)$, dada pela Eq. (3.16), é uma medida da intensidade da competição: valores mais altos resultam em maior competição. A validade deste simples mecanismo de competição de dedos (mesmo para tempos avançados da dinâmica) em fluxo de Hele-Shaw tem sido exaustivamente testada por simulações numéricas [56, 57].

Para examinar o efeito de molhamento na competição dos dedos, plotamos na Fig. 3.5 o gráfico de $C(n,t)$ em função do tempo para duas situações: sem considerar a camada fina de fluido molhante ($\gamma=0$) e na presença da mesma ($\gamma=2/3$). Os parâmetros usados nesse gráfico são os mesmo das Figs. 3.3 e 3.4. Consideramos o acoplamento entre dois modos de Fourier ($n=20$ e $n/2=10$). Note que, pela análise da Fig. 3.5, a função $C(n,t)$ é sempre negativa para $t > 0$, independentemente de levar ou não o molhamento em consideração. Isto indica um maior favorecimento da competição entre os dedos invasores que apontam para dentro. Também é evidente que a competição deve ser muito menos intensa na presença do molhamento. Para tempos mais longos, a curva tracejada (situação sem molhamento) possui uma magnitude bem maior do que a curva sólida (situação com molhamento). Em outras palavras, podemos

dizer que não levar o efeito de molhamento em consideração resultaria em uma competição exagerada dos dedos invasores. Como esperado, todas as conclusões provenientes da Fig. 3.5 estão em total acordo com os eventos de competição de dedos observados nas Figs. 3.3 e 3.4, reforçando a validade deste simples mecanismo de análise de competição.

3.3.2 Formato dos dedos

Descreveremos agora o mecanismo fracamente não-linear responsável pelo formato dos dedos. De acordo com a Ref.[3], o fenômeno de alargamento e estreitamento das pontas dos dedos pode ser descrito considerando a influência do modo fundamental n no crescimento do seu primeiro harmônico $2n$. Sendo assim, as equações de movimento para os modos seno e cosseno do primeiro harmônico são

$$\dot{a}_{2n} = \lambda(2n) a_{2n} + \frac{1}{2} T(n,t) a_n^2, \quad (3.17)$$

$$\dot{b}_{2n} = \lambda(2n) b_{2n}, \quad (3.18)$$

onde

$$T(n,t) = \left\{ F(2n,n) + \lambda(n) G(2n,n) + H(2n)\lambda(n) \left[\lambda(n) + \frac{\dot{b}}{2b} \right] \right\}, \quad (3.19)$$

é a função ponta dos dedos. Observando a Eq. (3.18), notamos que o crescimento do modo seno b_{2n} não é influenciado por a_n e também não apresenta nenhum acoplamento de segunda ordem. Portanto nos concentraremos no crescimento do modo cosseno a_{2n} . Assim como a função $C(n,t)$ rege todo o comportamento do sistema em relação à competição, $T(n,t)$ comanda o comportamento do formato dos dedos. É o sinal de $T(n,t)$ que controla qual dos dois fenômenos, alargamento ou estreitamento das pontas dos dedos, será favorecido pela dinâmica do sistema. Pela Eq. (3.17), vemos que, se $T(n,t) > 0$, há um termo de ordem a_n^2 forçando o crescimento de $a_{2n} > 0$. Portanto o valor positivo da função $T(n,t)$ faz com que os dedos invasores se tornem grandes, favorecendo assim o alargamento da ponta dos dedos invasores. Em contrapartida, se $T(n,t) < 0$, o crescimento de $a_{2n} < 0$ seria favorecido, resultando no estreitamento da ponta dos dedos invasores.

Para analisar a influência do molhamento no formato dos dedos, tanto dos invasores quanto dos que apontam para fora, na Fig. 3.6 plotamos a evolução temporal da função $T(n,t)$ considerando o acoplamento de dois modos de Fourier ($n = 20$ e $2n = 40$). O gráfico apresenta a situação em que a camada de fluido molhante não é considerada ($\gamma = 0$, curva tracejada), e para situação na qual é levada em consideração ($\gamma = 2/3$, curva sólida). Novamente, os parâmetros usados foram os mesmos das Figs. 3.3 and 3.4. O primeiro ponto a se notar é que a função $T(n,t)$ é sempre positiva independente do valor de γ . Pelo que foi discutido anteriormente, isto indica um favorecimento do alargamento da ponta dos dedos invasores. Na presença do molhamento, a função $T(n,t)$ encontra-se bem acima da curva tracejada (caso em que o molhamento

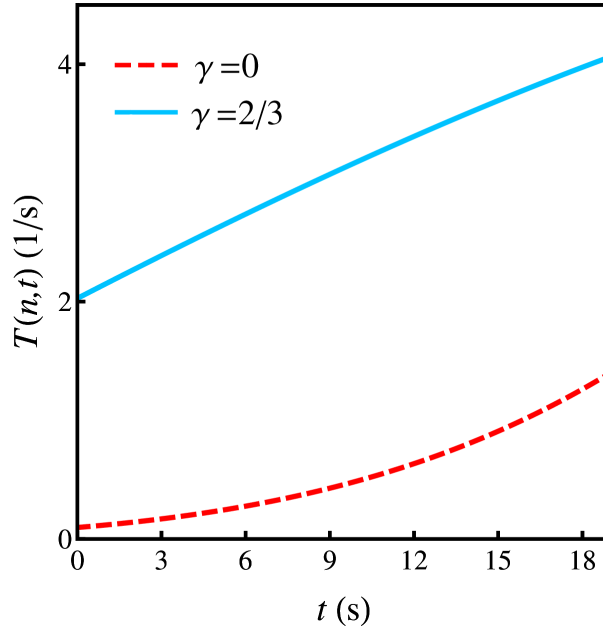


Figura 3.6 Variação da função ponta dos dedos $T(n,t)$ com o tempo t . A curva tracejada (sólida) é plotada para $\gamma = 0$ ($\gamma = 2/3$).

não é levado em consideração). Isto significa que a ponta dos dedos invasores, quando molhamento é considerado, é mais larga do que as pontas formadas na situação em que o molhamento não é considerado.

O comportamento previsto pelo gráfico da Fig. 3.6 está em total acordo com as interfaces apresentadas nas Figs. 3.3(b) e 3.4(b). Examinando estas interfaces, é evidente que quando $\gamma = 2/3$ os dedos invasores são muito mais largos do que os dedos que apontam para fora. Além disso, a estrutura formada apresenta dedos menores e um padrão muito mais estável do que quando $\gamma = 0$, mostrando que o molhamento realmente tem uma grande importância no formato dos dedos.

No presente capítulo tratamos do problema do levantamento usando uma abordagem perturbativa fracamente não-linear, a qual nos deu acesso analítico às mudanças, decorrentes da camada de fluido molhante, na interface fluido-fluido. No capítulo 4, permaneceremos no problema do levantamento em célula de Hele-Shaw radial para estudar a força de adesão em fluidos espacialmente confinados. Mostraremos que a formação de dedos viscosos na interface, a inclusão do efeito de molhamento e de estresses viscosos normais são efeitos físicos essenciais a serem considerados em um modelo analítico para o cálculo da força de adesão. Por fim, vamos comparar nosso modelo teórico com os dados experimentais existentes e, através de uma análise estatística, a eficácia do nosso modelo ficará clara.

Força de adesão em fluidos

4.1 Introdução

O estudo das propriedades de forças adesivas em fluidos viscosos tem sido um ramo bastante explorado nos últimos anos [13–15, 17–29]. A medição precisa e a caracterização dessa força, proveniente do confinamento espacial de um fluido, são os principais objetivos dos recentes trabalhos. Através do teste de adesão, mais conhecido como teste "probe-tack" [30, 31], medidas experimentais da força podem ser obtidas, tornando possível o estudo de sua magnitude bem como sua variação com parâmetros típicos do sistema. Nesse teste, uma amostra de fluido é confinada entre duas placas paralelas de pequeno espaçamento. A placa superior é levantada a uma velocidade preestabelecida, enquanto que a placa inferior é mantida fixa. Durante o processo de levantamento da placa, a força aplicada é medida e o resultado é uma curva em função do espaçamento entre as placas ou do tempo, que quantifica a resposta adesiva do fluido.

O sistema onde o processo de medição de forças adesivas acontece é exatamente igual ao estudado no capítulo anterior, ou seja, levantamento em célula de Hele-Shaw. Durante o processo de levantamento, o fenômeno da formação de padrões de dedos viscosos ocorre na interface que separa o fluido interno, de alta viscosidade, do fluido externo menos viscoso. Tal fenômeno tem sido bastante estudado tanto teoricamente quanto experimentalmente [11, 12, 16, 40, 54, 58–66]. Como mostrado no capítulo 3, a interface fluido-fluido deforma-se, assumindo morfologias visualmente complexas de origem não-linear.

Um aspecto interessante que conecta as pesquisas realizadas nas Refs. [13–15, 17–31] (medição de forças de adesão) com as pesquisas das Refs. [11, 12, 16, 40, 54, 58–66] (estudo da formação de padrões no problema de levantamento), é a influência da formação de dedos na determinação da força de adesão. Essa importante conexão vem se estabelecendo através de experimentos e simulações numéricas nas Refs. [14, 17, 18, 20]. Inicialmente, Derks *et al.* [14] obtiveram uma boa concordância entre sua expressão teórica para força de levantamento (considerando a interface como uma circunferência estável) e seus resultados experimentais. Devido aos bons resultados, os autores suspeitaram que os detalhes da interface deveriam ter pouca ou nenhuma influência na força de adesão. Entretanto, trabalhando com fluidos de viscosidades mais altas e aumentando a velocidade de levantamento, os experimentos realizados por Poivet *et al.* [20] mostraram que, de fato, a formação de dedos tem influência na força de levantamento. Tal influência também foi investigada por sofisticadas simulações numéricas feitas na Ref. [17] por Lindner e colaboradores, e recentemente confirmada por uma série de experimentos conduzidos na Ref. [18] por Nase e colaboradores. A principal conclusão de todas essas análises é que a formação de dedos é responsável por uma diminuição na força de adesão.

Apesar de todas as informações úteis e avanços obtidos pelos experimentos e estudos numé-

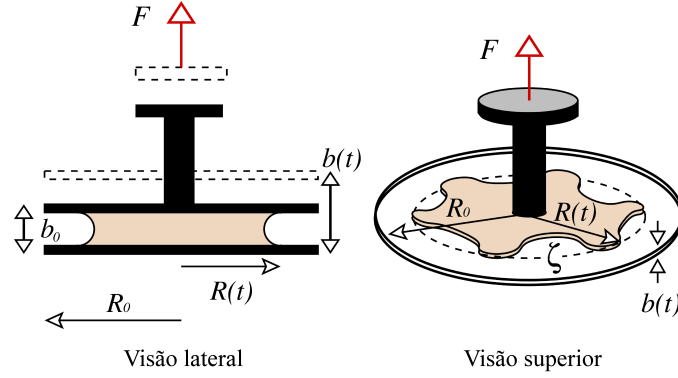


Figura 4.1 Desenho esquemático do aparato usado no teste de adesão.

ricos realizados nas Refs. [14, 17, 18, 20] sobre o papel da instabilidade hidrodinâmica na magnitude da força de adesão, um modelo analítico que leve em consideração este efeito ainda não existe. O modelo atual, baseado numa interface perfeitamente circular e na ação unicamente de forças viscosas, não está em concordância satisfatória com medidas experimentais [18]. Neste contexto, apresentamos no presente capítulo um modelo que incorpora explicitamente o efeito dos dedos na expressão para força de adesão. Além disso, ainda mostramos que uma descrição teórica mais precisa deve levar em consideração a contribuição proveniente do molhamento [32, 38, 42] e dos estresses viscosos normais [67–69]. A ação do confinamento do fluido entre as placas também foi levada em consideração. A comparação do nosso resultado analítico com as medidas experimentais obtidas na Ref. [18] mostra uma melhor concordância entre teoria e dados adquiridos em laboratório.

4.2 Dedução da força adesiva durante o levantamento

Considere um fluido incompressível de grande viscosidade η confinado entre duas placas paralelas de espaçamento dependente do tempo $b(t)$. Em volta deste fluido, há um outro fluido de viscosidade desprezível (veja Fig. 4.1). A placa superior do aparato está sujeita a uma força de levantamento F de forma que o espaçamento entre as placas evolui linearmente com o tempo $b = b(t) = b_0 + Vt$, sendo $\dot{b} = V$ a velocidade de levantamento constante e $b_0 = b(t = 0)$ o espaçamento inicial entre as placas. O eixo z é definido na direção perpendicular às placas e a placa inferior permanece fixa em $z = 0$ durante todo o processo de levantamento. Inicialmente, a interface entre os fluidos é circular, com um raio inicial $R_0 = R(t = 0)$. Pela conservação de volume, o raio da interface não-perturbada é dado por $R(t) = R_0 \sqrt{\frac{b_0}{b(t)}}$.

Nesta seção, queremos calcular a força de levantamento F como uma função do espaçamento b , levando em consideração a instabilidade hidrodinâmica responsável pela formação de dedos viscosos, o efeito da fina camada de fluido molhante e a contribuição de estresses viscosos normais. Generalizando a abordagem de Derks *et al.* [14], a qual assume que a interface é perfeitamente circular durante todo o processo de levantamento, consideramos a ação

dos dedos de forma que a interface perturbada é descrita por $\mathfrak{R}(\theta, t) = R(t) + \zeta(\theta, t)$. A perturbação $\zeta(\theta, t)$ é representada por uma série de Fourier $\zeta(\theta, t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \zeta_n(t) \exp(in\theta)$ em coordenadas polares (r, θ) , onde $\zeta_n(t)$ são as amplitudes de Fourier e n são números de onda discretos.

Assim como no capítulo anterior, o fluxo é regido pela Lei de Darcy bidimensional (3.2) [11, 16, 18, 58] e pela condição de incompressibilidade (3.3) [11]. Usando as equações (3.2) e (3.3), é fácil verificar que o campo de pressão $p = p(r, \theta)$ obedece à equação de Poisson

$$\nabla^2 p = \frac{12\eta\dot{b}}{b^3}, \quad (4.1)$$

cujas solução é

$$p(r, \theta) = \frac{3\eta\dot{b}}{b^3} r^2 + \sum_{n \neq 0} p_n(t) \left(\frac{r}{R}\right)^{|n|} e^{in\theta}. \quad (4.2)$$

Note que, quando a formação de dedos é negligenciada (situação considerada em todos os trabalhos anteriores envolvendo cálculo analítico da força de adesão), o segundo termo da Eq. (4.2) não aparece nos cálculos.

Para levar em consideração o papel da instabilidade de Saffman-Taylor, é necessário achar a relação entre as amplitudes do campo de pressão $p_n(t)$ e as amplitudes de perturbação $\zeta_n(t)$. Tal relação é obtida empregando a condição de contorno cinemática [34]

$$\frac{\partial \mathfrak{R}}{\partial t} = \left[v_r - \frac{1}{r} \frac{\partial \mathfrak{R}}{\partial \theta} v_\theta \right]_{r=\mathfrak{R}}. \quad (4.3)$$

Na Eq. (4.3), v_θ e v_r são, respectivamente, as componentes azimutal e radial da velocidade do fluido. Nossa teoria perturbativa considera termos até segunda ordem em ζ . Expandindo a Eq. (4.3) e considerando a Eq. (4.2), obtemos, após usar a transformada inversa de Fourier, as amplitudes do campo de pressão

$$\begin{aligned} p_n(t) = & \frac{12\eta}{b^2} \left[-\frac{R}{n} \dot{\zeta}_n(t) - \frac{\dot{b}R}{2b|n|} \zeta_n(t) + \sum_{n' \neq 0} \left(\operatorname{sgn}(nn') - \frac{1}{|n|} \right) \dot{\zeta}_{n'} \zeta_{n-n'} \right. \\ & \left. + \frac{\dot{b}}{2b} \sum_{n' \neq 0} \left(\operatorname{sgn}(nn') - \frac{1}{|n|} \right) \zeta_{n'} \zeta_{n-n'} \right]. \end{aligned} \quad (4.4)$$

Para incluir as contribuições provenientes da tensão superficial, estresses viscosos normais e efeitos de molhamento, consideramos a condição de contorno da pressão na interface entre os fluidos [28, 29, 32, 38, 42, 67]

$$p|_{r=\mathfrak{R}} = \left\{ \left[\frac{\pi}{4} \kappa - \frac{2}{b} \right] \sigma - \frac{2J\sigma}{b} \operatorname{Ca}^\gamma + 2\eta \frac{\partial v_r}{\partial r} \right\} \Big|_{r=\mathfrak{R}}, \quad (4.5)$$

onde, sem perda de generalidade, escolhemos a pressão do fluido externo como sendo zero. A contribuição da tensão superficial σ e da curvatura da interface são representadas pelo primeiro termo da Eq. (4.5), onde κ denota a curvatura da interface no plano da célula de Hele-Shaw [34]. Ainda no primeiro termo, temos a contribuição da curvatura constante $2/b$ associada com o perfil da interface na direção perpendicular às placas paralelas.

Assim como no capítulo anterior, assumimos que o fluido interno molha as placas da célula de forma que o segundo termo da Eq. (4.5) está relacionado com o efeito de molhamento. Finalmente, o terceiro termo de (4.5) incorpora os estresses viscosos normais [67–69].

A força necessária para levantar a placa no teste de adesão é obtida integrando a diferença de pressão dos fluidos na região ocupada pelo fluido interno. Sendo assim, a força de adesão é dada por [17]

$$F(t) = - \int_{\Omega(t)} p dA = \frac{1}{2} \int_{\Omega(t)} \nabla p \cdot \mathbf{r} dA - \frac{1}{2} \int_{\Gamma(t)} p \hat{\mathbf{n}} \cdot \mathfrak{R} \hat{\mathbf{r}} dl, \quad (4.6)$$

onde $\mathbf{r}$ é o vetor posição no plano da célula de Hele-Shaw (plano $x - y$). Na Eq. (4.6), há duas contribuições para força de levantamento exercida pelo aparato experimental na placa superior: uma originada da seção transversal da área $\Omega(t)$ ocupada pelo fluido interno no plano $x - y$, e outra vinda do contorno dependente do tempo $\Gamma(t)$ desta mesma área.

Para obter a expressão final da força de adesão, basta substituir o campo de pressão (4.2) e a diferença de pressão na interface (4.5) na primeira e na segunda integral da Eq. (4.6), respectivamente. Mantendo sempre termos até segunda ordem em ζ , temos

$$F(t) = f(t) + f_s(t) + J f_w(t) + \sum_{n \neq 0} \left[g(t) + g_s(t) + J g_w(t) \right] |\zeta_n(t)|^2, \quad (4.7)$$

onde

$$f(t) = \frac{3\pi\eta\dot{b}}{2b^3} R^4, \quad (4.8)$$

$$f_s(t) = \frac{\pi\eta\dot{b}}{b} R^2, \quad (4.9)$$

$$f_w(t) = \frac{2\pi\sigma}{b} R^2 \left(\frac{\eta\dot{b}}{2\sigma b} R \right)^\gamma, \quad (4.10)$$

$$g(t) = -\frac{12\pi\eta}{b^2} \lambda(n) R^2, \quad (4.11)$$

$$g_s(t) = -2\pi\eta |n|(n-1) \left[\lambda(n) + \frac{\dot{b}}{2b} \right], \quad (4.12)$$

e

$$g_w(t) = \frac{\gamma f_w(t)}{2R^2} \left\{ 1 - n^2 + \lambda(n) \frac{2b}{\dot{b}} \left[(\gamma - 1) \lambda(n) \frac{2b}{\dot{b}} - 2 \right] \right\}. \quad (4.13)$$

Nas Eqs. (4.7)-(4.13), os subscritos s e w identificam, respectivamente, os termos relacionados com estresses viscosos normais e efeitos de molhamento.

Note que nas Eqs. (4.11)-(4.13), $\lambda(n)$ representa a taxa de crescimento linear das amplitudes de perturbação $\zeta_n(t)$, dada por [40, 66]

$$\lambda(n) = \frac{1}{s(n) + w(n)} \left\{ \frac{\dot{b}}{2b} [|n| - s(n)] - \frac{\pi\sigma b^2}{48\eta R^3} |n|(n^2 - 1) \right\}, \quad (4.14)$$

onde

$$s(n) = 1 + \frac{b^2}{6R^2} |n|(|n| - 1) \quad (4.15)$$

está associado com os efeitos de estresses viscosos normais, e

$$w(n) = \gamma |n| J \frac{b}{6R} \left(\frac{2b\sigma}{\dot{b}\eta R} \right)^{1-\gamma} \quad (4.16)$$

está relacionado com os efeitos de molhamento. Vale a pena mencionar que, consistentemente com os resultados experimentais, verificamos que, para o fluido viscoso fortemente confinado usado aqui e nas Refs. [14, 17, 18, 20], a contribuição de efeitos de capilaridade (termos entre colchetes na Eq. (4.5)) na força de adesão (4.7) é muito pequena e pode ser desprezada. No entanto, estes efeitos ainda são relevantes para o cálculo das amplitudes de perturbação $\zeta_n(t)$.

A expressão (4.7) para força de adesão é o principal resultado analítico deste capítulo. Em tal expressão, $f(t)$ corresponde ao modelo teórico tradicional (a partir de agora será denominado de "modelo mais simples") da força de adesão, considerando apenas contribuições de efeitos viscosos [14, 17, 18, 20]. Todos os termos restantes na Eq. (4.7) estão associados com contribuições físicas adicionais consideradas no nosso modelo teórico. As funções $g(t)$, $g_s(t)$ e $g_w(t)$ acoplam com o termo relacionado com a formação de dedos $|\zeta_n(t)|^2$. Note também que, para obter a dependência completa da força com o tempo, precisamos saber da evolução temporal das amplitudes de perturbação $\zeta_n(t)$. A dinâmica dessas perturbações foi recentemente estudada nas Refs. [40, 66], nas quais os autores usaram a Lei de Darcy (3.2), a condição de incompressibilidade (3.3), e as condições de contorno (3.5) e (3.6) para obter a equação diferencial para evolução temporal das amplitudes de perturbação $\dot{\zeta}_n(t) = \lambda(n)\zeta_n(t) + O(\zeta^2)$, resultando em

$$\zeta_n(t) = \zeta_n(0) \exp \left[\int_0^t \lambda(n) dt' \right]. \quad (4.17)$$

4.3 Discussão e comparação com os experimentos

Nesta seção, vamos comparar os dados experimentais dos testes de adesão realizados por Nase *et al.* [18] com as previsões teóricas do modelo analítico (4.7) desenvolvido no presente capítulo. Esse conjunto de dados também será comparado com o modelo mais simples da força de

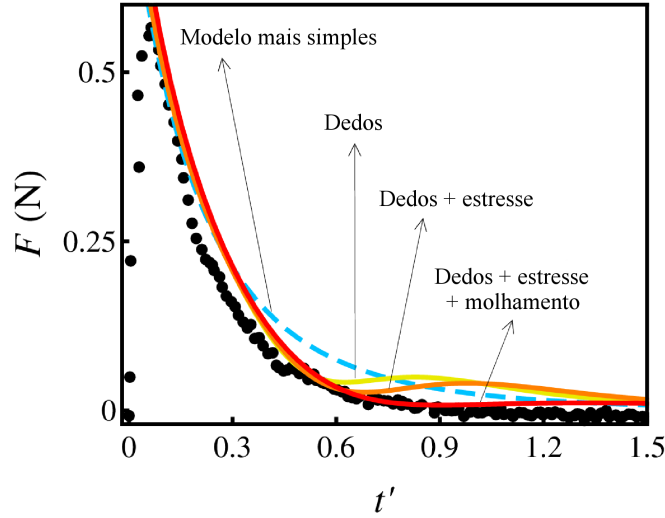


Figura 4.2 Força de adesão F plotada em função do tempo reduzido t' para razão de aspecto $q = 54.5$ e parâmetro de tensão superficial $\tau_0 = 3.0 \times 10^{-5}$. Em $t = 0$, $n_c = 145$. A curva tracejada representa o resultado obtido pelo modelo mais simples [14, 17, 18, 20]. Os pontos experimentais (•) são do artigo de Nase *et al.* Ref. [18]. As três curvas sólidas referem-se às situações descritas neste trabalho, onde gradativamente incluímos os vários efeitos físicos considerados: primeiramente, apenas a formação de dedos; logo em seguida, dedos mais estresses viscosos normais e finalmente, dedos, estresses e molhamento.

adesão (Eq. (4.8)) [14, 17, 18, 20], o qual apenas considera efeitos viscosos, negligenciando a formação de dedos, efeitos de estresses viscosos normais e molhamento. Para facilitar a comparação entre o nosso modelo e os dados fornecidos pela Ref. [18], definimos os seguintes parâmetros adimensionais:

$$t' = \frac{V}{b_0} t, \quad \tau_0 = \frac{\sigma b_0^3}{12\eta V R_0^3}, \quad \text{and} \quad q = \frac{R_0}{b_0}, \quad (4.18)$$

onde t' é o tempo reduzido, τ_0 é o parâmetro de tensão superficial e q é a razão de aspecto inicial (medida do confinamento do sistema). Lembrando que estes são os parâmetros utilizados nos experimentos realizados em [18].

Começaremos nossa discussão examinando a Fig. 4.2, onde a força de adesão F (medida em Newtons) é plotada em função do tempo reduzido t' . É importante mencionar que os dados experimentais são apresentados exatamente da mesma forma que foram mostrados por Nase *et al.* na Ref. [18] (veja a Fig. 14 desta referência). Todos os parâmetros utilizados são precisamente os mesmos usados nos experimentos [18], ou seja, $\eta = 100$ Pa s, $\sigma = 0.02$ N/m, e $R_0 = 3.0$ mm. Isto também se aplica para os valores escolhidos para razão de aspecto q . Na Fig. 4.2, tomamos $q = 54.5$, $\tau_0 = 3.0 \times 10^{-5}$ e todos os valores de amplitudes de perturbação iniciais $\zeta_n(0)$ foram da ordem de $10^{-7} - 10^{-6}$ m. Em nossos cálculos, os números de onda (modos de Fourier) participantes são $0 \leq n \leq n_c$, onde n_c é o modo crítico em $t = 0$ obtido fazendo $\lambda(n = n_c) = 0$ (veja Eq. (4.14)). $0 \leq n \leq n_c$ define a banda de modos instáveis.

A Fig. 4.2 apresenta os pontos experimentais retirados da Ref. [18] (representados pelo símbolo ●) e quatro curvas teóricas. Uma curva experimental típica, como a representada na Fig. 4.2 pelos pontos pretos, começa com um pico na força de adesão assim que o aparato é levantado. A força rapidamente atinge um valor máximo e logo depois decai assintoticamente para zero conforme a separação das placas aumenta. A formação do pico [13–15, 19, 20] da força está relacionada com a elasticidade do aparato usado no teste de adesão. Assim como foi feito nas Refs. [14, 17, 18, 20], sem perda de generalidade, consideramos o aparato experimental usado para levantar a placa superior como sendo infinitamente rígido, de forma que a força apresenta um valor inicial finito e tende a zero conforme as placas se separam (como pode ser visto nas quatro curvas da Fig. 4.2).

Em relação as quatro curvas teóricas ilustradas na Fig. 4.2, a tracejada refere-se aos resultados do modelo mais simples [14, 17, 18, 20], enquanto que as três curvas sólidas restantes são os resultados adquiridos pelo nosso modelo analítico para força de adesão. Tais curvas adicionam progressivamente os efeitos físicos relevantes considerados em nossa análise. A primeira delas apenas adiciona a contribuição da formação de dedos, a segunda leva em consideração a ação dos dedos mais os estresses viscosos normais, e por último temos a terceira curva, a qual adiciona todos os efeitos anteriormente mencionados e ainda inclui o efeito de molhamento. A abordagem é feita dessa forma para que fique visível a contribuição de cada um dos efeitos em moldar o formato final da curva da força de adesão.

Ainda na Fig. 4.2, é possível notar que há uma clara discrepância entre a curva tracejada (representando o modelo mais simples) e os dados experimentais. Com o objetivo de conseguir uma melhor concordância, adicionamos progressivamente os efeitos considerados em nosso modelo. Primeiramente, adicionamos ao modelo mais simples apenas a contribuição relacionada com a formação de dedos: percebe-se que isto aproxima a curva teórica aos dados experimentais para valores intermediários de t' ($0.4 < t' < 0.6$). No entanto, a curva sólida, associada à formação de dedos, apresenta um salto para maiores valores de t' ($t' > 0.6$). Tal salto não está de acordo com os pontos experimentais, indicando assim que adicionando perturbativamente apenas o efeito de dedos, não há como conseguir uma boa concordância entre teoria e experimento (ao menos para grandes valores de t'). Em um trabalho recente [66], Dias e Miranda mostraram que as previsões para o número de dedos no levantamento em célula de Hele-Shaw melhoravam significativamente quando estresses viscosos normais e molhamento eram considerados. Os estresses estão relacionados com o gradiente da velocidade normal à interface fluido-fluido [67–69]. Em contrapartida, a fina camada de fluido molhante (fluido interno) aderida às placas [32, 38, 42] poderia explicar o fato de que a força de adesão é menor do que a prevista pelo modelo mais simples [18].

Tendo em mente todas essas informações [18, 32, 38, 42, 66–69], primeiramente decidimos considerar os efeitos combinados da formação de dedos juntamente com os estresses (veja a curva na Fig. 4.2). Como pode ser visto, os estresses viscosos normais tendem a diminuir a intensidade do salto não físico que aparece para maiores valores de t' , mas ele ainda não desaparece por completo. Neste ponto, uma alternativa lógica seria considerar o efeito da fina camada de fluido molhante aderida às placas durante o processo de levantamento. Analisando a curva sólida correspondente à combinação dos três efeitos (formação de dedos, estresses viscosos normais e efeitos de molhamento), é evidente que o salto não físico desaparece por

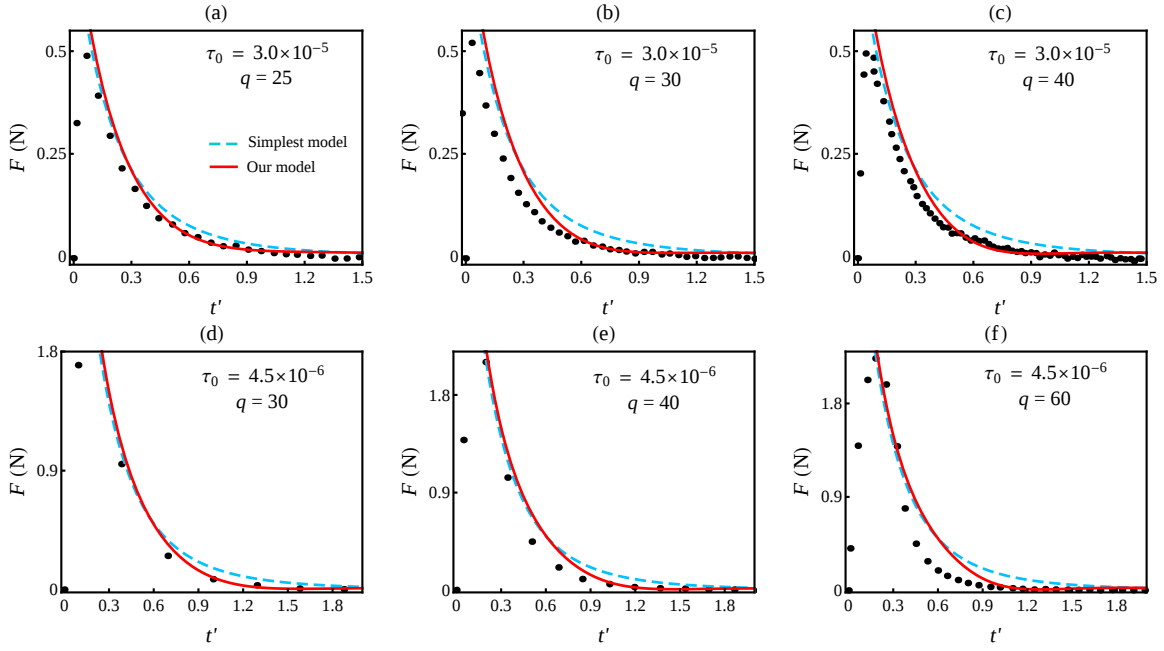


Figura 4.3 Força de adesão F em função do tempo reduzido t' , para vários valores de razão de aspecto q e dois valores para o parâmetro de tensão superficial τ_0 : 3.0×10^{-5} [Figs. 4.3(a)-4.3(c)], e 4.5×10^{-6} [Figs. 4.3(d)-4.3(f)]. Nas Figs. 4.3(a)-4.3(c) $n_c = 145$ em $t = 0$, enquanto que nas Figs. 4.3(d)-4.3(f) $n_c = 360$ em $t = 0$. As curvas teóricas referem-se à força de adesão calculada pelo modelo mais simples usado nas Refs. [14, 17, 18, 20] (curvas tracejadas), e pelo nosso modelo, que leva em consideração a ação conjunta da formação de dedos, efeitos de molhamento e estresses viscosos normais (curvas sólidas). Os pontos experimentais (●) são da Fig. 14 do artigo de Nase *et al.* - Ref. [18].

completo e a curva sólida acaba por representar uma concordância bem melhor entre os dados experimentais e o nosso modelo teórico. Todos os resultados e conclusões acerca do caso ilustrado pela Fig. 4.2 continuam válidos para diferentes valores de τ_0 e q usados neste trabalho. Com o objetivo de mostrar a eficiência do nosso modelo teórico para previsão da força de adesão no processo de levantamento, apresentaremos uma série de resultados para outros valores de razão de aspecto q e para dois valores de parâmetro de tensão superficial τ_0 .

Dando continuidade à discussão, na Fig. 4.3 há uma série de gráficos da força de adesão F em função do tempo reduzido t' . As curvas tracejadas representam o modelo mais simples utilizado nas Refs. [14, 17, 18, 20], enquanto que as curvas sólidas são obtidas do nosso modelo teórico. Assim como na Fig. 4.2, todos os dados experimentais foram retirados do artigo de Nase *et al.* [18] (mais precisamente da Fig. 14) e são representados pelas bolas pretas (●). As figuras 4.3(a)-4.3(c) são plotadas para o valor de parâmetro de tensão superficial $\tau_0 = 3.0 \times 10^{-5}$ e valores crescentes de confinamento: (a) $q = 25$, (b) $q = 30$ e (c) $q = 40$, precisamente os valores de τ_0 e q usados na Fig. 14(a) da Ref. [18]. Em compensação, Figs. 4.3(d)-4.3(f) consideram um menor valor para o parâmetro de tensão superficial τ_0 ($\tau_0 = 4.5 \times 10^{-6}$) e valores para razão de aspecto iguais à: (d) $q = 30$, (e) $q = 40$ e (f) $q = 60$. Os valores de τ_0 e q utilizados nas Figs. 4.3(d)-4.3(f) são exatamente os mesmo usados na Fig. 14(b) da Ref. [18].

Como verificado pelos experimentos realizados em [18], maiores valores de τ_0 estão asso-

ciados com interfaces menos instáveis que apresentam um menor número de dedos. Portanto o efeito da formação de dedos, a princípio, não deveria ser tão dramático nas Figs. 4.3(a)-4.3(c). Também é um fato comprovado experimentalmente [18] que maiores valores de q (confinamento) produzem interfaces mais instáveis, com um maior número de dedos. Sendo assim, para um valor fixo de τ_0 , o efeito da formação de dedos se torna mais relevante para maiores valores de q . Examinando as Figs. 4.3(a)-4.3(c), vemos que os dados experimentais encontram-se abaixo da linha tracejada calculada pelo modelo mais simples, enquanto que a curva sólida (representando nosso modelo) apresenta regiões onde há uma maior concordância com os dados experimentais, principalmente para valores não muito pequenos de t' . Isto indica que nosso modelo analítico para força de adesão, que leva em consideração a formação de dedos, efeitos de estresses viscosos normais e molhamento, proporciona uma melhor concordância com as medidas experimentais existentes.

Para pequenos valores de tempo reduzido, note que ambas as curvas (tracejada e sólida) se sobrepõem e encontram-se acima dos primeiros pontos experimentais, o que realmente não é uma surpresa, uma vez que, como mencionado anteriormente, já é de conhecimento que o pico inicial na força de adesão está relacionado com a elasticidade do aparato experimental [14, 17–20]. A elasticidade do material não é considerada em nenhum dos modelos (mais simples e o nosso), justificando parcialmente a falta de concordância de ambos os modelos com os pontos experimentais para tempos iniciais da dinâmica. Conforme q aumenta, é possível notar que a distância entre a curva tracejada e os pontos experimentais também aumenta, enquanto que a curva sólida se mantém próxima aos pontos, mostrando a relevância dos vários efeitos físicos considerados em nosso modelo para melhor descrever os experimentos.

Neste ponto, analisaremos as Figs. 4.3(d)-4.3(f), que foram plotadas para maiores valores de confinamento q e um menor valor de τ_0 . Portanto, é de se esperar uma interface com dedos mais robustos e que se apresentam em maior quantidade [18] em relação à interface formada pelos parâmetros das Figs. 4.3(a)-4.3(c). Nessas circunstâncias, é previsível que o efeito da formação de dedos na força de adesão seja ainda mais relevante do que no caso anterior. E isto é exatamente o que se pode verificar examinando as Figs. 4.3(d)-4.3(f): a distância entre os dados experimentais e as curvas teóricas (tanto para o modelo simples quanto para o nosso) tende a aumentar conforme q aumenta. Mas, assim como nas Figs. 4.3(a)-4.3(c), a curva sólida ainda apresenta uma melhor concordância com os dados experimentais, ao menos para $q = 30$ e 40 . No entanto, a concordância não é tão boa para $q = 60$. Isto pode ser explicado pelo fato de que nosso modelo analítico é baseado em uma abordagem perturbativa, a qual é válida apenas para pequenas amplitudes de perturbação. Altos valores de q rapidamente produzem dedos de tamanhos consideráveis, situação que está além da validade do modelo analítico proposto. Apesar dessa limitação, os resultados teóricos aqui obtidos ainda oferecem uma melhor concordância com os experimentos.

Apesar de toda a análise feita visualmente pelos gráficos das Figs. 4.3(a)-Fig. 4.3(f), uma abordagem mais quantitativa que evidencie a eficiência de nosso modelo quando comparado com o modelo mais simples usado nas Refs. [14, 17, 18, 20] ainda é necessária. Para fazer isso, utilizamos o teste Kolmogorov-Smirnov [70, 71] usando os dados plotados na Fig. 4.3. Pelo fato de que ambos os modelos (mais simples e o nosso) não consideram a elasticidade do aparato experimental, todos os pontos experimentais antes do pico da força de adesão não foram

p -valor						
Fig. 4.3	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)	(f)
Exp., Nosso modelo	0.5713	0.9180	0.9821	0.9999	0.9971	0.9205
Exp., Modelo mais simples	0.5713	0.0887	0.1340	0.9627	0.4792	0.1549

Tabela 4.1 p -valor associado com os dados das Figs. 4.3(a)-Fig. 4.3(f). Nível de significância do teste Kolmogorov-Smirnov: $\alpha = 0.05$. O melhor modelo é aquele que apresenta o maior p -valor.

considerados. Este teste estatístico é muito comum nos campos da ciência e da engenharia, e é muito útil quando se quer comparar dois conjuntos de medidas. Para mais informações sobre o teste, veja, e.g., Ref. [72]; para detalhes computacionais, veja Refs. [72, 73].

Considere dois modelos teóricos para quais a hipótese "o modelo teórico ajusta os dados experimentais" não pode ser rejeitada. Para os dois casos, o então denominado p -valor, obtido pelo teste Kolmogorov-Smirnov, é maior do que um nível de significância preestabelecido α (uma escolha comum é $\alpha = 0.05$ para que o teste tenha um nível de confiança de 95%). Neste contexto, escolhemos como o melhor modelo aquele que apresenta o maior p -valor. Os resultados obtidos para o cálculo do p -valor, levando-se em consideração as medidas experimentais da Ref. [18] (plotadas nas Fig. 4.3(a)- Fig. 4.3(f)), são apresentados na tabela 4.1. Primeiramente, mostramos o p -valor aplicando o teste para os dados experimentais [18] e os dados calculados a partir do nosso modelo (Exp., Nosso modelo). Na linha seguinte, apresentamos o p -valor usando o teste para os dados experimentais e os dados provenientes do modelo mais simples (Exp., Modelo mais simples). De acordo com o teste Kolmogorov-Smirnov, os resultados apresentados na tabela 4.1 indicam que nosso modelo analítico proporciona uma maior concordância com os dados experimentais.

Conclusão

A formação de padrões na natureza é um tema que desafia quem o estuda e tenta compreender os vários mecanismos responsáveis pela formação de tais estruturas, muitas vezes de grande complexidade. Em particular, os padrões formados devido à instabilidade hidrodinâmica de Saffman-Taylor numa célula de Hele-Shaw capturaram nosso interesse. No capítulo 1, procuramos mostrar de uma maneira simples e qualitativa a formação de padrões em dois sistemas distintos: o problema da injeção em célula de Hele-Shaw radial e sua variante, o problema do levantamento. Apesar das complicadas estruturas interfaciais que aparecem em ambos os problemas, mostramos que dois mecanismos não-lineares são os principais responsáveis pela formação dos padrões: a variabilidade no comprimento dos dedos (conhecida como fenômeno da competição) e a bifurcação de dedos. Através de uma série de ilustrações de experimentos e simulações computacionais, foi possível entender as principais diferenças morfológicas entre os padrões presentes nos dois problemas. No problema da injeção, a competição aparece de forma modesta, enquanto que a bifurcação de dedos é bem evidente. Já no levantamento, o papel desses mecanismos não-lineares se invertem, sendo a competição de dedos muito intensa e a bifurcação completamente extinta.

Ainda no capítulo 1, abordamos o problema da medição e caracterização de forças adesivas em fluidos viscosos, questionando o fato de que os cálculos analíticos da força de adesão tomam como premissa que a interface evolui de forma estável e perfeitamente circular, negligenciando assim as deformações que surgem na mesma durante o processo de levantamento (teste de adesão). Em seguida, comentamos que, dependendo da natureza do fluido deslocado nos problemas de fluxo em célula de Hele-Shaw, uma fina camada de espessura finita pode ficar aderida às placas conforme o fluido é deslocado. Chamamos este fenômeno de molhamento e o escolhemos como tema principal desta dissertação de mestrado.

É um fato bem estabelecido que as correções oriundas do filme de molhamento são necessárias para uma melhor descrição do fluxo em célula de Hele-Shaw de geometria retangular. Curiosamente, os estudos deste efeito em célula de Hele-Shaw radial são escassos ou limitados puramente ao regime linear da dinâmica. Motivado por estes fatos, no capítulo 2 nós investigamos o papel do fluido molhante na estabilidade linear e fracamente não-linear da dinâmica no problema da injeção em célula de Hele-Shaw radial. Empregando uma abordagem de modos acoplados, fomos capazes de obter acesso analítico às mudanças, provenientes da inclusão do molhamento, nos mecanismos básicos responsáveis pela formação de padrões nesse sistema. Os resultados indicam que o molhamento tem um papel fundamental na estabilização geral dos dedos viscosos, atenuando os fenômenos de bifurcação e variabilidade do comprimento dos dedos. Quando o fluido deslocado molha as placas da célula de Hele-Shaw em um fluxo radial, a interface resultante apresenta dedos pequenos e largos.

No problema da injeção, o filme fino de fluido molhante exerce grande impacto na morfologia da interface e nos mecanismos não-lineares responsáveis pela formação dos padrões. Naturalmente, nos questionamos se o molhamento também poderia desempenhar mudanças em outros sistemas relacionados com fluxo de Hele-Shaw. Desta forma, no capítulo 3, estudamos a influência do molhamento no problema do levantamento em célula de Hele-Shaw radial. Neste contexto, consideramos o fluxo de um fluido viscoso molhante cercado por um fluido (não molhante) de baixa viscosidade, de tal forma que a placa superior da célula de Hele-Shaw pode ser levantada e o espaçamento b entre as placas é dependente do tempo.

O problema do levantamento foi tratado por meio de uma análise perturbativa fracamente não-linear. O método permitiu explorar analiticamente os aspectos não-lineares relevantes da interface fluido-fluido. Nossos resultados teóricos indicaram que o efeito de molhamento pode ter grande impacto na morfologia dos padrões resultantes. Mais especificamente, os padrões que obtivemos revelaram uma morfologia na qual os dedos competem, levando ao aparecimento de dedos pequenos e largos provenientes do fluido externo não molhante, intercalados com os dedos pequenos e finos pertencentes ao fluido interno molhante. Mostramos também que os mecanismos básicos conectados com os peculiares aspectos não-lineares da interface podem ser interpretados qualitativamente, considerando o acoplamento de alguns modos de Fourier específicos. Nossas previsões teóricas foram capazes de capturar os principais aspectos da morfologia dos padrões obtidos em experimentos envolvendo levantamento em célula de Hele-Shaw [12–18]. Se o efeito de molhamento não fosse levado em consideração, a interface final apresentaria uma competição superestimada, na qual os dedos do fluido externo seriam apenas um pouco mais largos do que os dedos do fluido interno. Nossas previsões teóricas abrem portas para possíveis verificações experimentais, bem como simulações numéricas fortemente não-lineares, do problema do levantamento nas circunstâncias em que o efeito de molhamento é relevante.

Ainda no problema do levantamento em célula de Hele-Shaw, realizamos, no capítulo 4, o estudo da força de adesão em fluidos espacialmente confinados. Sofisticadas simulações numéricas e medidas experimentais obtidas em laboratório indicam que a força de levantamento, medida no teste de adesão ("probe-tack test"), é influenciada pela formação de dedos viscosos que surgem na interface fluido-fluido. O modelo analítico tradicional (denominado de modelo mais simples) não leva em consideração a formação de dedos na interface, resultando num desacordo entre previsões teóricas e dados experimentais da força de adesão. Sendo assim, propomos, no capítulo 4, uma descrição analítica da força que adicionasse ao modelo mais simples não só a formação de dedos interfaciais, mas também a influência de estresses viscosos normais e a ação do filme molhante deixado para trás aderido às placas do aparato de levantamento. Comparando nossos resultados analíticos com os dados experimentais existentes, mostramos que a adição sucessiva destes três efeitos físicos (formação de dedos, estresses viscosos normais e molhamento) levavam a uma melhora nas previsões teóricas para força de levantamento. As comparações foram realizadas para dois valores de parâmetro de tensão superficial e para vários valores de confinamento (razão de aspecto q do sistema). Por fim, empregando o teste estatístico de Kolmogorov-Smirnov, ficou evidente que nosso modelo analítico proporciona uma melhor descrição teórica do que a descrição obtida pelo modelo mais simples.

Vê-se por isso que o efeito de molhamento, muitas vezes negligenciado em estudos teó-

ricos, provocou sensíveis mudanças na morfologia e nos mecanismos não-lineares presentes na formação de padrões, tanto para o problema da injeção quanto para o levantamento. Além disso, o molhamento apresentou grande relevância no cálculo da força de adesão, sendo um dos efeitos físicos responsáveis pela melhora entre a previsão teórica para força de adesão e os dados experimentais existentes. Esperamos que o trabalho desenvolvido nesta dissertação leve a novos estudos teóricos e experimentais sobre fluxo em Hele-Shaw no qual o efeito de fluido molhante seja relevante.

Referências

- [1] L. Paterson, J. Fluid Mech. **113**, 513 (1981).
- [2] S. S. S. Cardoso e A. W. Woods, J. Fluid Mech. **289**, 351 (1995).
- [3] J. A. Miranda e M. Widom, Physica D **120**, 315 (1998).
- [4] P. G. Saffman e G. I. Taylor, Proc. R. Soc. London Ser. A **245**, 312 (1958).
- [5] G. Tryggvanson e H. Aref, J. Fluid Mech. **136**, 1 (1983).
- [6] M. W. DiFrancesco e J. V. Maher, Phys. Rev. A **39**, 4709 (1989); *ibid.* Phys. Rev. A **40**, 295 (1989).
- [7] J. A. Miranda e M. Widom, Int. J. Mod. Phys. B **12**, 931 (1998).
- [8] B. Jha, L. Cueto-Felgueroso e R. Juanes, Phys. Rev. Lett. **106**, 194502 (2011).
- [9] J.-D. Chen, J. Fluid Mech. **201**, 223 (1989); J. -D. Chen, Exp. Fluids **5**, 363 (1987).
- [10] S. W. Li, J. S. Lowengrub, e P. H. Leo, J. Comput. Phys. **225**, 554 (2007).
- [11] M. J. Shelley, F-R. Tian, e K. Wlodarski, Nonlinearity **10**, 1471 (1997).
- [12] S. Roy e S. Tarafdar, Phys. Rev. E **54**, 6495 (1996).
- [13] M. Tirumkudulu, W. B. Russel, e T. J. Huang, Phys. Fluids **15**, 1588 (2003).
- [14] D. Derks, A. Lindner, C. Creton, e D. Bonn, J. Appl. Phys. **93**, 1557 (2003).
- [15] S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, J. Teisseire, e P. Fabre, Eur. Phys. J. E **15**, 97 (2004).
- [16] M. Ben Amar e D. Bonn, Physica D **209**, 1 (2005).
- [17] A. Lindner, D. Derks, e M. J. Shelley, Phys. Fluids **17**, 072107 (2005).
- [18] J. Nase, D. Derks, e A. Lindner, Phys. Fluids **23**, 123101 (2011).
- [19] B. A. Francis e R. G. Horn, J. Appl. Phys. **89**, 4167 (2001).
- [20] S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, e P. Fabre, Europhys. Lett. **62**, 244 (2003).
- [21] R. D. Welsh, M.Sc. thesis, Massachusetts Institute of Technology, 2001.

- [22] J. A. Miranda, Phys. Rev. E **69**, 016311 (2004).
- [23] J. A. Miranda, R. M. Oliveira, e D. P. Jackson, Phys. Rev. E **70**, 036311 (2004).
- [24] Y.O.M. Abdelhay, M. Chaouche, e H. Van Damme, Appl. Clay Sci. **42**, 163 (2008).
- [25] S. A. Lira e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **80**, 046313 (2009).
- [26] Q. Barral, G. Ovarlez, X. Chateau, J. Boujlel, B. Rabideau, e P. Coussot, Soft Matter **6**, 1343 (2010).
- [27] R. H. Ewoldt, P. Tourkine, G. H. McKinley, e A. E. Hosoi, Phys. Fluids **23**, 073104 (2011).
- [28] E. O. Dias e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **85**, 016312 (2012).
- [29] E. O. Dias e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **86**, 046322 (2012).
- [30] A. Zosel, Colloid Polym. Sci. **263**, 541 (1985).
- [31] H. Lakrout, P. Sergot, e C. Creton, J. Adhes. **69**, 307 (1999).
- [32] C. -W. Park e G. M. Homsy, J. Fluid Mech. **139**, 291 (1984).
- [33] F. P. Bretherton, J. Fluid Mech. **10**, 166 (1966).
- [34] Para artigos de revisão, veja G. M. Homsy, Annu. Rev. Fluid Mech. **19**, 271 (1987); K. V. McCloud e J. V. Maher, Phys. Rep. **260**, 139 (1995); J. Casademunt, Chaos **14**, 809 (2004).
- [35] D. A. Reinelt, Phys. Fluids **30**, 2617 (1987).
- [36] D. A. Reinelt, J. Fluid Mech. **183**, 219 (1987).
- [37] P. Tabeling e A. Libchaber, Phys. Rev. A **33**, 794 (1986).
- [38] L. Schwartz, Phys. Fluids **29**, 3086 (1986).
- [39] P. H. A. Anjos e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **88**, 053003 (2013).
- [40] P. H. A. Anjos e J. A. Miranda, Soft Matter **10**, 7459 (2014). **Este artigo foi escolhido para ser a capa desta edição da revista Soft Matter.**
- [41] A. Bonito, M. Picasso e M. Laso, Journal of Computational Physics **215**, 691 (2006).
- [42] L. M. Martyushev e A. I. Birzina, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 045201 (2008).
- [43] E. O. Dias e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **88**, 013016 (2013).
- [44] P. G. Saffman, J. Fluid Mech. **173**, 73 (1986).

- [45] E. Alvarez-Lacalle, J. Ortín, e J. Casademunt, Phys. Rev. E **74**, 025302(R) (2006).
- [46] P. G. de Gennes, Rev. Mod. Phys. **57**, 827 (1985).
- [47] F. Melo, J. F. Joanny, e S. Fauve, Phys. Rev. Lett. **63**, 1958 (1989).
- [48] J. A. Diez e L. Kondic, Phys. Rev. Lett. **86**, 632 (2001).
- [49] M. A. Fardin, M. O. Rossier, P. Rangamani, P. D. Avigan, N. C. Gauthier, W. Vonnegut, A. Mathur, J. Hone, R. Iyengar, e M. P. Sheetz, Soft Matter **6**, 4788 (2010).
- [50] J. D. Chen, J. Fluid Mech. **201**, 223 (1989).
- [51] J. Mathiesen, I. Procaccia, H. L. Swinney, e M. Thrasher, Europhys. Lett. **76**, 257 (2006).
- [52] S. W. Li, J. S. Lowengrub, J. Fontana, e P. Palffy-Muhoray, Phys. Rev. Lett. **102**, 174501 (2009).
- [53] E. O. Dias e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **88**, 043002 (2013).
- [54] S. Sinha, T. Dutta e S. Tarafdar, Eur. Phys. J. E **25**, 267 (2008).
- [55] T. Maxworthy, Phys. Rev. A **39**, 5863 (1989).
- [56] J. A. Miranda e E. Alvarez-Lacalle, Phys. Rev. E **72**, 026306 (2005).
- [57] C. Y. Chen, Y. S. Huang, e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **84**, 046302 (2011).
- [58] J. Bohr, S. Brunak, e T. Nørretranders, Europhys. Lett. **25**, 245 (1994).
- [59] S. K. Thamida, P. V. Takhistov, e H. -C. Chang, Phys. Fluids **13**, 2190 (2001).
- [60] S. Sinha, S. K. Kabiraj, T. Dutta, e S. Tarafdar, Eur. Phys. J. B **36**, 297 (2003).
- [61] S. K. Kabiraj e S. Tarafdar, Physica A **328**, 305 (2003).
- [62] J. A. Miranda e R. M. Oliveira, Phys. Rev. E **69**, 066312 (2004).
- [63] C.-Y. Chen, C.-H. Chen, e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **71**, 056304 (2005).
- [64] J. Nase, A. Lindner, e C. Creton, Phys. Rev. Lett. **101**, 074503 (2008).
- [65] E. O. Dias e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **81**, 016312 (2010).
- [66] E. O. Dias e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **88**, 043002 (2013).
- [67] E. Alvarez-Lacalle, J. Ortín, e J. Casademunt, Phys. Fluids **16**, 908 (2004).
- [68] H. Gadêlha e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **79**, 066312 (2009).
- [69] H. Kim, T. Funada, D. D. Joseph, e G. M. Homsy, Phys. Fluids **21**, 074106 (2009).

- [70] A. N. Kolmogorov, G. Ist. Ital. Att. **4**, 83 (1933).
- [71] N. Smirnov, Ann. Math. Stat. **19**, 279 (1948).
- [72] M.G. Kendall e A. Stewart, *The Advanced Theory of Statistics*, 3rd ed. (Hafner, New York, 1973), Vol. 2.
- [73] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, e W. T. Vetterling, *Numerical Recipes: The Art of Scientific Computing* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1986).

APÊNDICE A:

Derivação da velocidade normal à interface v_n para o problema da injeção

Neste apêndice mostraremos os passos principais do cálculo da componente normal da velocidade da interface, termo essencial para inclusão apropriada do efeito de molhamento em nossa abordagem de modos acoplados.

No capítulo 2 mostramos que, para o problema da injeção em célula de Hele-Shaw radial, o fluxo é laplaciano. Sendo assim, podemos escrever a velocidade do fluido $\mathbf{v}_j$ como o gradiente do potencial de velocidade ϕ_j :

$$\mathbf{v}_j = -\nabla\phi_j = -\left(\frac{\partial\phi_j}{\partial r}\right)\hat{\mathbf{r}} - \left(\frac{1}{r}\frac{\partial\phi_j}{\partial\theta}\right)\hat{\boldsymbol{\theta}}, \quad (\text{A:.1})$$

onde ϕ_j está devidamente representado pela Eq. (2.5).

O vetor unitário $\hat{\mathbf{n}}$ normal à interface, expandido até segunda ordem em ζ , é dado por

$$\hat{\mathbf{n}} = \frac{\nabla(r-\Re)}{|\nabla(r-\Re)|}\Big|_{r=\Re} = \left[1 - \frac{1}{2R^2}\left(\frac{\partial\zeta}{\partial\theta}\right)^2\right]\hat{\mathbf{r}} - \frac{1}{R}\left(1 - \frac{\zeta}{R}\right)\frac{\partial\zeta}{\partial\theta}\hat{\boldsymbol{\theta}}, \quad (\text{A:.2})$$

de forma que basta realizar o produto interno entre a velocidade $\mathbf{v}_j$ e o vetor unitário $\hat{\mathbf{n}}$ para obter a componente normal da velocidade da interface. A condição de contorno cinemática, dada pela Eq. (2.8), a qual corresponde à continuidade da componente normal da velocidade dos fluidos na interface ($\mathbf{v}_1 \cdot \hat{\mathbf{n}} = \mathbf{v}_2 \cdot \hat{\mathbf{n}}$), nos permite definir

$$\begin{aligned} v_n = (\mathbf{v}_1 \cdot \hat{\mathbf{n}})|_{r=\Re} &= \frac{Q}{2\pi R} \left[1 - \left(1 - \frac{\zeta}{R}\right)\frac{\zeta}{R} - \frac{1}{2R^2}\left(\frac{\partial\zeta}{\partial\theta}\right)^2\right] \\ &- \sum_{n \neq 0} \frac{|n|}{R} \phi_{1n}(t) \left[1 - (1 - |n|)\frac{\zeta}{R} - i\frac{\text{sgn}(n)}{R}\frac{\partial\zeta}{\partial\theta}\right] e^{in\theta}. \end{aligned} \quad (\text{A:.3})$$

Esta equação representa a componente normal da velocidade da interface expandida consistentemente até segunda ordem em ζ . Com ela, é possível incluir o efeito de molhamento na condição de contorno (2.7) da diferença de pressão na interface. Ainda é necessário expressar as amplitudes do potencial de velocidade ϕ_{1n} em termos das amplitudes de perturbação ζ_n . Como mencionado no capítulo 3, basta usar a condição de contorno cinemática (2.8) para escrever ϕ_{1n} em termos das amplitudes ζ_n [3]

$$\begin{aligned} \phi_{1n}(t) = & -\frac{R}{|n|} \dot{\zeta}_n - \frac{Q}{2\pi R|n|} \zeta_n \\ & + \sum_{n' \neq 0} \left[\text{sgn}(nn') - \frac{1}{|n|} \right] \dot{\zeta}_{n'} \zeta_{n-n'} + \frac{Q}{2\pi R^2} \sum_{n' \neq 0} \text{sgn}(nn') \zeta_{n'} \zeta_{n-n'}. \end{aligned} \quad (\text{A:.4})$$

Desta forma, a Eq. (A:.3) fica completamente escrita em termos dos ζ_n .

Perceba que, no problema do levantamento em célula de Hele-Shaw, o potencial de velocidade ϕ_j obedece à equação de Poisson e não mais à equação de Laplace, como no caso da injeção. Isso faz com que o potencial ϕ_j (Eq. (3.4)) seja ligeiramente diferente. No entanto, todos os cálculos aqui demonstrados são facilmente generalizados para o problema do levantamento.

APÊNDICE B:

**Radial viscous fingering: Wetting film effects on
pattern-forming mechanism**

Radial viscous fingering: Wetting film effects on pattern-forming mechanisms

Pedro H. A. Anjos and José A. Miranda*

Departamento de Física, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, Pernambuco 50670-901, Brazil

(Received 27 August 2013; published 6 November 2013)

We consider the interfacial motion between two immiscible viscous fluids in the confined geometry of a radial Hele-Shaw cell. In this framework, we investigate the influence of a thin wetting film trailing behind the displaced fluid on the linear and weakly nonlinear dynamics of the system. More specifically, we examine how the interface instability and the pattern formation mechanisms of finger tip splitting and finger competition are affected by the presence of such a film in the low capillary number limit. Our theoretical analysis is carried out by employing a mode-coupling theory, which allows analytic access to wetting-induced changes in pattern morphology at the onset of nonlinearities.

DOI: [10.1103/PhysRevE.88.053003](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.88.053003)

PACS number(s): 47.15.gp, 47.54.-r, 47.20.Ma, 68.08.Bc

I. INTRODUCTION

The viscous fingering (Saffman-Taylor) problem [1] has been extensively studied during the past fifty years or so [2]. It comes about in the narrow passage between two close parallel plates of a Hele-Shaw cell, when a low viscosity fluid displaces a more viscous one. Under such circumstances, an instability develops at the fluid-fluid interface leading to the growth of fingerlike shapes. In the channel geometry of a rectangular Hele-Shaw cell [1,3–5] long, smooth steady state fingers are formed. On the other hand, in radial Hele-Shaw cells [6–8], where the less viscous fluid is injected at the center and drives radially the more viscous fluid, the emerging fingering structures compete and continue to evolve through repeated tip splitting. In this scenario new fingers are continuously generated, eventually resulting in a densely branched interfacial pattern [9,10]. Finger tip splitting and finger competition are the basic nonlinear mechanisms of the viscous fingering process.

Although highly nonlinear, due to its relative simplicity the viscous fingering instability has become a prototypical free boundary problem for many pattern-forming systems of both practical and academic relevance. The dynamic evolution of the problem is governed by the Hele-Shaw flow equations, described by a quasi-two-dimensional, gap-averaged Darcy's law (essentially fluid velocity proportional to the negative of the pressure gradient) and fluid incompressibility (divergenceless velocity field), supplemented by two boundary conditions at the interface [1–10]: a pressure jump as given by a Young-Laplace equation and the continuity (kinematic) condition for the normal component of the fluid velocity.

Despite the usefulness and effectiveness of the simplest version of the Hele-Shaw flow equations in describing critical issues such as interface stability, its original formulation has been improved over the years in order to provide a better match between theory and experiments. One particularly important improvement refers to the incorporation of three-dimensional effects related to the curvature in the transverse direction to the cell plates, as well as to the influence of wall wetting effects [11–20]. One major issue investigated in these works is the fact that the displaced viscous fluid wets the cell walls,

leaving a film of finite thickness behind. In particular, Park and Homsy [12] have shown that, in the limit of low capillary number Ca (relative measure of viscous and interfacial tension forces), the inclusion of the effects due to the thin wetting film leads to an order $Ca^{2/3}$ correction to the pressure difference boundary condition.

In fact, comparison between theory [12,16,17] and experiments [13,14] in rectangular Hele-Shaw cells revealed that the addition of the thin wetting film correction into the Young-Laplace condition is indeed necessary to provide a more satisfactory agreement between theoretical and experimental results. These findings reinforced the theoretical claim that the effect of the film has an important influence on the fingering dynamics in Hele-Shaw flows.

Curiously the great majority of studies dealing with the effects of thin wetting films focus on flows occurring in rectangular Hele-Shaw cells [11–17]. There are some studies addressing wetting film effects in radial Hele-Shaw flows, but in the context of centrifugally driven flows in a rotating Hele-Shaw cell [18,21,22]. Experiments performed in dry and pretreated rotating Hele-Shaw cells investigated the stable [21] and unstable [22] displacements of a rotating fluid annulus and have demonstrated that the stability of the annular structure depends substantially on the wetting conditions at the leading interface. Further experimental and numerical studies have been performed in Ref. [18], which considered the relevance of wetting in viscous fingering patterns arising on the border of a dense fluid droplet in a rotating Hele-Shaw cell. Their fully nonlinear numerical simulations and experiments have detected interface stabilization due to dynamic wetting.

In addition to the studies mentioned in the previous paragraph, only a few other investigations examined wetting film-related issues for injection-driven flow in radial Hele-Shaw cells. In 1989 Maxworthy [23] contrasted a series of meticulous experiments with various theoretical predictions and found that inclusion of wetting effects improves the agreement between theory and experiments. More recently a theoretical study performed by Kim *et al.* [24] revisited Maxworthy's experimental findings [23], and achieved a better agreement with experiments by taking into consideration the role played by viscous normal stresses [25,26]. Another recent experimental investigation [27] performed measurements of wetting film thicknesses in a radial Hele-Shaw cell.

*jme@df.ufpe.br

Only very recently a couple of groups carried out linear stability analyses specifically on the topic of film wetting effects on injection-driven radial Hele-Shaw flows [19,20]. In Ref. [19] the wetting film effects on the interface stability are not really discussed, but the calculation leading to their (somewhat cumbersome) linear dispersion relation [their Eq. (3.24)] does include the wetting film correction. The authors of Ref. [20] managed to derive a much simpler expression for the linear growth rate [Eq. (2) in their paper] and actually have shown that the wetting film effects have a stabilizing role, tending to decrease the magnitude of the growth rate of interfacial disturbances at the linear level. This last result is consistent with the rotating Hele-Shaw cell findings of Ref. [18] and with early studies in rectangular cell geometry [14].

It should be emphasized that investigations performed in Refs. [19,20] are restricted to the early time, purely linear regime in injection-driven radial Hele-Shaw flows, so that they cannot assess the effects of film wetting on the fundamental nonlinear mechanisms of finger tip splitting and finger competition. Therefore, a systematic study of the influence of the wetting film on the most salient morphological features of the patterns arising in injection-driven radial Hele-Shaw flows is still lacking. The investigation of these key issues is the main purpose of this work.

The remainder of this paper is structured as follows. Section II presents our theoretical weakly nonlinear approach. From the Hele-Shaw equations including wetting corrections, and under low capillary number conditions, we derive a second-order mode-coupling equation that describes the time evolution of the interfacial amplitudes under injection-driven radial Hele-Shaw flow circumstances. Our analytical mode-coupling theory provides important insights into pattern formation processes at the onset of nonlinear effects, just by considering the interplay between small number of perturbative Fourier modes. In Sec. III we focus on discussing the role played by the wetting thin film in regulating finger tip-splitting phenomena and in determining the behavior of finger competition events. Our concluding remarks are presented in Sec. IV.

II. WEAKLY NONLINEAR APPROACH

Consider a Hele-Shaw cell of gap spacing b containing two immiscible, incompressible, viscous fluids (see Fig. 1). Denote the viscosities of the inner and outer fluids, respectively, as η_1 and η_2 . Between the two fluids there exists a surface tension

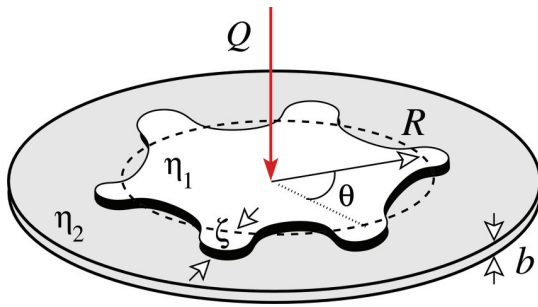


FIG. 1. (Color online) Representative sketch of the injection-driven flow in a radial Hele-Shaw cell.

σ . Fluid 1 is injected into fluid 2 at a constant injection rate Q (equal to the area covered per unit time). As in Refs. [11–17,19,20] our weakly nonlinear theory is developed with the assumption that the displaced fluid (fluid 2) wets the walls of the Hele-Shaw cell, leaving behind a thin wetting film. Likewise, it is assumed that the capillary number is small.

The perturbed fluid-fluid interface is described as $\mathfrak{R}(\theta, t) = R(t) + \zeta(\theta, t)$, where θ represents the azimuthal angle, and $R(t)$ is the time-dependent unperturbed radius $R = R(t) = \sqrt{R_0^2 + Qt/\pi}$, with R_0 being the unperturbed radius at $t = 0$. Here $\zeta(\theta, t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \zeta_n(t) \exp(in\theta)$ denotes the net interface perturbation with Fourier amplitudes $\zeta_n(t)$, and discrete wave numbers n . Our perturbative approach keeps terms up to the second order in ζ . In the Fourier expansion of ζ we include the $n = 0$ mode to maintain the area of the perturbed shape independent of the perturbation ζ . Mass conservation imposes that the zeroth mode is written in terms of the other modes as $\zeta_0 = -(1/2R) \sum_{n \neq 0} |\zeta_n(t)|^2$.

For the effectively two-dimensional geometry of the radial Hele-Shaw cell, the governing equation of the system is the gap-averaged Darcy's law [1,2]

$$\mathbf{v}_j = -\frac{b^2}{12\eta_j} \nabla p_j, \quad (1)$$

where $\mathbf{v}_j$ and p_j denote the velocity and pressure in fluids $j = 1, 2$, respectively. From the irrotational nature of the flow ($\nabla \times \mathbf{v}_j = 0$) and the incompressibility condition

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_j = 0, \quad (2)$$

it can be readily verified that the velocity potential ϕ_j ($\mathbf{v}_j = -\nabla \phi_j$) obeys the Laplace equation. In this context, to get the equation of motion for the interface, we rewrite (1) for each of the fluids in terms of the velocity potential. Integrate and then subtract the resulting equations from each other to obtain [5,8]

$$A \left(\frac{\phi_1 + \phi_2}{2} \right) - \left(\frac{\phi_1 - \phi_2}{2} \right) = -\frac{b^2(p_1 - p_2)}{12(\eta_1 + \eta_2)}, \quad (3)$$

where the dimensionless parameter $A = (\eta_2 - \eta_1)/(\eta_2 + \eta_1)$ is the viscosity contrast.

To include the contributions coming from surface tension and wetting effects we consider a generalized Young-Laplace pressure boundary condition, which expresses the pressure jump across the fluid-fluid interface [11–20]

$$p_1 - p_2 = -\frac{\pi}{4} \sigma \kappa - \frac{2\sigma}{b} [\cos \theta_c + JCa^\gamma]. \quad (4)$$

The first term on the right-hand side (RHS) of Eq. (4) represents the contribution related to surface tension and the interfacial curvature κ in the plane of the Hele-Shaw cell. The factor $\pi/4$ is purely a capillary static effect, coming from the z average of the mean interfacial curvature. The second term on the RHS of Eq. (4) accounts for the contribution of the constant curvature associated with the interface profile in the direction perpendicular to the Hele-Shaw cell plates, set by the static contact angle θ_c measured between the plates and the curved meniscus. As in most experiments and wetting models, we consider a nonwetting fluid displacing a wetting one, so that $\theta_c = 0$. Finally, the third term on the RHS of (4) considers the effect of a thin wetting film trailing behind the displaced fluid,

where $Ca = \eta_2 v_n / \sigma$ is the capillary number, v_n the normal component of the interface velocity, $J = 3.8$, and $\gamma = 2/3$.

At this point, we comment on a noteworthy issue involving the pressure boundary condition (4): Unlike the rectangular Hele-Shaw cell situation [11–17] for which the thickness of the wetting film is constant for a prescribed injection rate, the film thickness could change in the viscous fingering problem in radial Hele-Shaw cells. If one considers that the wetting film thickness scales as the capillary number, which is defined by the finger tip velocity $dR/dt = Q/2\pi R$ (due to mass conservation), the film thickness would decrease in the radial direction. In this scenario the wetting film effect on fingering instability could become less and less pronounced at later times. However, despite this decrease in the wetting film thickness, the fact is that at the onset of nonlinearities (situation treated in this work) we find that wetting film effects are still sizable and do affect the viscous fingering pattern-forming mechanisms. The precise influence of the variable thickness of the wetting film on fully nonlinear dynamics of viscous fingering remains an open question. Proper verification of such effects at the advanced time regime would require intensive numerical simulations and laboratory experiments and are beyond the scope of this work.

The problem we study is specified by the generalized pressure jump boundary condition (4), plus the kinematic boundary condition which states that the normal components of each fluid's velocity are continuous at the interface

$$\frac{\partial \mathfrak{R}}{\partial t} = \left(\frac{1}{r^2} \frac{\partial \mathfrak{R}}{\partial \theta} \frac{\partial \phi_i}{\partial \theta} \right) - \left(\frac{\partial \phi_i}{\partial r} \right). \quad (5)$$

Following standard steps performed in previous weakly nonlinear studies for Hele-Shaw flows [5,8], first, we define Fourier expansions for the velocity potentials. Then we express ϕ_j in terms of the perturbation amplitudes ζ_n by considering condition (5). Substituting these relations, and the pressure jump condition Eq. (4) into Eq. (3), always keeping terms up to second order in ζ , and Fourier transforming, we find the equation of motion for the perturbation amplitudes (for $n \neq 0$)

$$\begin{aligned} \dot{\zeta}_n = & \lambda(n) \zeta_n + \sum_{n' \neq 0} \left\{ F(n, n') \zeta_{n'} \zeta_{n-n'} + G(n, n') \dot{\zeta}_{n'} \zeta_{n-n'} \right. \\ & \left. + H(n) \left[\dot{\zeta}_{n'} \dot{\zeta}_{n-n'} + \frac{Q}{2\pi R^2} \zeta_{n'} \dot{\zeta}_{n-n'} \right] \right\}, \end{aligned} \quad (6)$$

where the overdot denotes total time derivative,

$$\begin{aligned} \lambda(n) = & \frac{1}{1 + w(n)} \left[\frac{Q}{2\pi R^2} (A|n| - 1) \right. \\ & \left. - \frac{\pi \sigma b^2 (A + 1)}{96 \eta_2 R^3} |n|(n^2 - 1) \right], \end{aligned} \quad (7)$$

is the linear growth rate, and

$$w(n) = \gamma |n| J \frac{(A + 1)}{12} \frac{b}{R} \left(\frac{2\pi R \sigma}{Q \eta_2} \right)^{1-\gamma} \quad (8)$$

is related to the wetting film contribution. Note that considering the fact that $\dot{R} = Q/2\pi R$ one could write $\eta_2 \dot{R}/\sigma = Ca'$ as a local variable capillary number in these expressions. Even though we do consider the establishment of this time-dependent modified capillary number Ca' in our calculation,

we do not write our expressions explicitly in terms of Ca' , but rather in terms of η_2 , R , and σ .

The second-order mode-coupling terms are given by

$$\begin{aligned} F(n, n') = & \frac{1}{1 + w(n)} \left(\frac{|n|}{R} \left\{ \frac{QA}{2\pi R^2} \left[\frac{1}{2} - \text{sgn}(nn') \right] \right. \right. \\ & \left. - \frac{\pi b^2 \sigma}{48(\eta_1 + \eta_2) R^3} \left[1 - \frac{n'}{2}(3n' + n) \right] \right\} \\ & \left. - \frac{3Qw(n)}{4\pi R^3} n'(n - n') \right), \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} G(n, n') = & \frac{1}{1 + w(n)} \left\{ \frac{1}{R} [A|n|[1 - \text{sgn}(nn')] - 1] \right. \\ & \left. + \frac{w(n)(1 - \gamma)}{2R} \right\}, \end{aligned} \quad (10)$$

and

$$H(n) = \frac{w(n)}{1 + w(n)} \frac{\pi R}{Q} (1 - \gamma), \quad (11)$$

where the sgn function equals ± 1 according to the sign of its argument.

The expressions (6)–(11) represent the mode-coupling equations of the viscous fingering problem in a radial Hele-Shaw cell, taking into consideration the contributions from wetting film effects. This set of nonlinear equations opens up the possibility of investigating analytically how the stability and morphology of the evolving fluid-fluid interface respond to the action of thin film wettability.

We have verified that by setting $\gamma = 0$, Eqs. (6)–(11) reproduce the equivalent expressions originally derived in Ref. [8], where the effects of the wetting film are not taken into account. Note that in this limit a proper match with their results is obtained if the extra $\pi/4$ multiplicative factor appearing in the surface tension term in Eq. (4) is replaced by one.

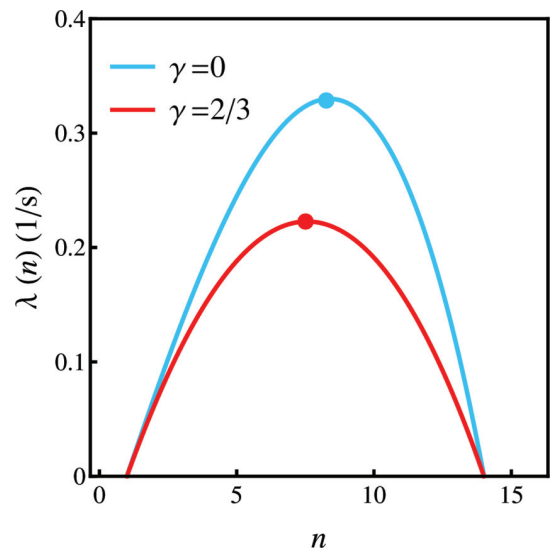


FIG. 2. (Color online) Linear growth rate $\lambda(n)$ as a function of mode n , for the cases without ($\gamma = 0$), and with wetting ($\gamma = 2/3$) at time $t = 6.5$ s. The maxima of the curves are indicated by small dots.

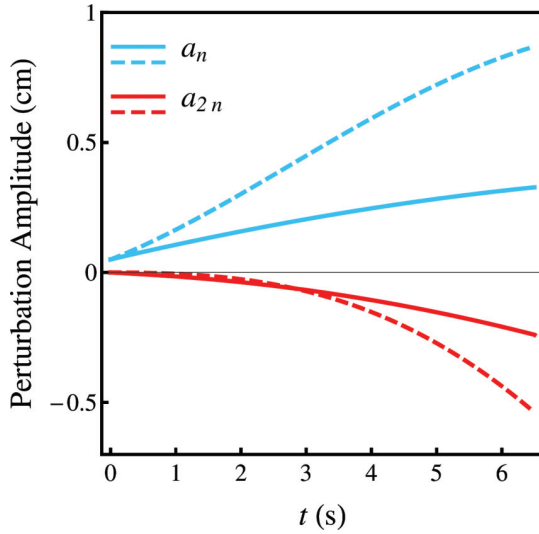


FIG. 3. (Color online) Time evolution of the cosine perturbation amplitudes a_n and a_{2n} . The dashed (solid) curves are plotted for $\gamma = 0$ ($\gamma = 2/3$).

III. WETTING FILM EFFECTS

In the next three subsections we use our mode-coupling approach to investigate the interface evolution at first and second order. To simplify our discussion it is convenient to rewrite the net perturbation in terms of cosine and sine modes

$$\zeta(\theta, t) = \zeta_0 + \sum_{n=1}^{\infty} [a_n(t) \cos(n\theta) + b_n(t) \sin(n\theta)], \quad (12)$$

where $a_n = \zeta_n + \zeta_{-n}$ and $b_n = i(\zeta_n - \zeta_{-n})$ are real valued. Without loss of generality we may choose the phase of the fundamental mode so that $a_n > 0$ and $b_n = 0$.

We stress that the values we take for our parameters throughout the rest of this work are consistent with typical physical quantities used in real experiments for injection-driven radial viscous flows in Hele-Shaw geometry [2,6,8,9]. Most of the parameters we use are taken from Paterson's classical experiment [6]. We consider the rapid growth of fingers, as air [$\eta_1 \approx 0$] is blown at a constant injection rate $Q = 2\pi \text{ cm}^2/\text{s}$ into glycerin [$\eta_2 \approx 5.21 \text{ g}/(\text{cm s})$] in a radial source flow Hele-Shaw cell. The thickness of the cell $b = 0.15 \text{ cm}$ and the surface tension $\sigma = 63 \text{ dyne/cm}$. The initial radius $R_0 = 1.0 \text{ cm}$ and the evolution of the interfaces we consider run up to time $t = 6.5 \text{ s}$.

A. Linear regime

Although the main focus of our present study is to understand how the wetting film affects intrinsically nonlinear effects related to the morphology of the fingers, for the sake of completeness and clarity we highlight some useful information that can be extracted already at the linear level.

Let us begin by briefly examining Eq. (7): It is interesting to point out that this linear dispersion relation differs from the conventional one (which neglects wetting) just in the prefactor $1/[1 + w(n)]$, which introduces an explicit dependence on γ . So one's first conclusion is that the critical mode n_c of the

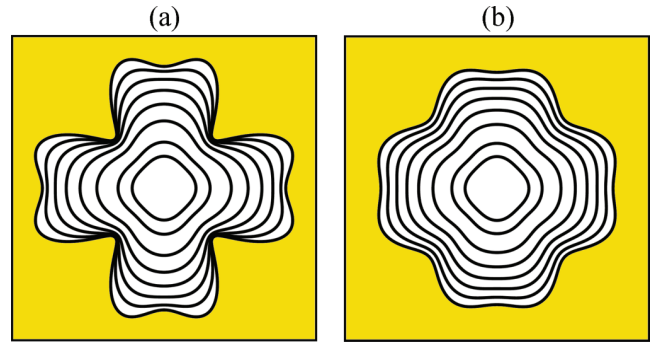


FIG. 4. (Color online) Snapshots of the evolving interface for the interaction of two cosine modes $n = 4$ and $2n = 8$: (a) $\gamma = 0$, and (b) $\gamma = 2/3$.

system, that is, the mode for which $\lambda(n) = 0$, is not modified by the consideration of wetting effects. Therefore, the width of the band of unstable modes [region of Fourier modes within the interval $0 \leq n \leq n_c$] is not affected by the presence of the wetting fluid. While n_c is not changed, we have verified that the wave number of the fastest growing mode $n_{\max}$ [obtained by setting $d\lambda(n)/dn = 0$] is just slightly reduced when wetting effects are added. Since $n_{\max}$ is connected to the typical number of interfacial fingers rising at the linear level, one anticipates that the number of emerging fingers should not be significantly influenced by the action of wetting. But, if neither n_c nor $n_{\max}$ are strongly affected, one could wonder what would be the main effect of wettability at the linear regime.

The answer to this point is given in Fig. 2, which plots the linear growth rate $\lambda(n)$ as a function of mode number n , at time $t = 6.5 \text{ s}$, for $\gamma = 0$ (wetting is neglected) and $\gamma = 2/3$ (wetting effects are taken into account). It can be seen that even though n_c is kept unchanged, and $n_{\max}$ is just shifted a bit towards lower wave numbers, the magnitude of the growth rate is considerably reduced by the action of wetting. This would indicate that wetting would tend to stabilize the growth of interfacial instabilities at the linear regime. Nevertheless, one must go beyond the purely linear stage in order to explicitly verify how wetting would affect the nonlinear phenomena related to finger tip splitting and finger competition.

B. Weakly nonlinear regime

This section demonstrates the usefulness of our weakly nonlinear analysis in elucidating key aspects related to finger tip behavior and competition under the action of wetting film effects.

1. Tip splitting

At second order the most noteworthy phenomenon in injection-driven radial Hele-Shaw flows is finger tip splitting. Within our mode-coupling approach tip splitting is related to the influence of a fundamental mode n on the growth of its harmonic $2n$ [8]. Under these circumstances, the equations of motion for the cosine and sine modes of the harmonic are

$$\dot{a}_{2n} = \lambda(2n)a_{2n} + \frac{1}{2}T(2n,n)a_n^2, \quad (13)$$

$$\dot{b}_{2n} = \lambda(2n)b_{2n}, \quad (14)$$

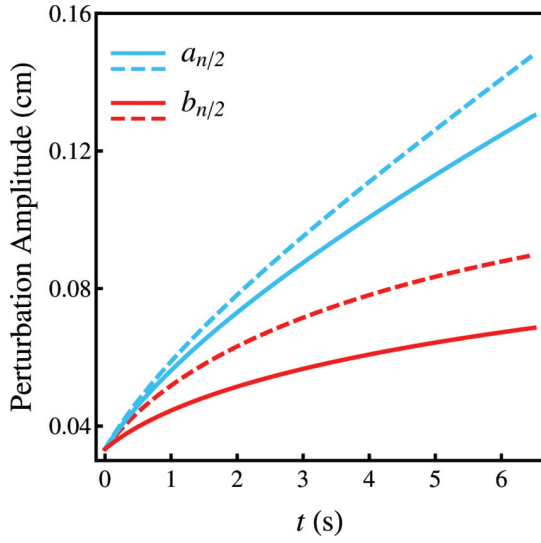


FIG. 5. (Color online) Time evolution of the cosine $a_{n/2}$ and sine $b_{n/2}$ perturbation amplitudes of the subharmonic mode. The dashed (solid) curves are plotted for $\gamma = 0$ ($\gamma = 2/3$).

where

$$T(2n, n) = \left\{ F(2n, n) + \lambda(n)G(2n, n) + H(2n)\lambda(n) \left[\lambda(n) + \frac{Q}{2\pi R^2} \right] \right\}. \quad (15)$$

From Eq. (14) we can see that the growth of the sine mode b_{2n} is uninfluenced by a_n , and does not present second-order couplings, so we focus on the growth of the cosine mode. In fact, Eq. (13) shows that the presence of the fundamental mode n forces growth of the harmonic mode $2n$. It has been shown in Ref. [8] that in the absence of wetting film effects a_{2n} is driven negative, precisely the sign that leads to finger tip widening and finger tip splitting. Here we study how the presence of the wetting film could modify this scenario.

To examine the influence of wetting film effects on finger tip behavior at second order, in Fig. 3 we plot the time evolution of the cosine perturbation amplitudes for the fundamental mode (a_n) and for its harmonic mode (a_{2n}). We consider situations in which wetting effects are ignored ($\gamma = 0$, dashed curves) and taken into account ($\gamma = 2/3$, solid curves). We take the initial amplitudes as $a_n = R_0/20$, and $a_{2n} = 0$. By inspecting Fig. 3 it is clear that the presence of wetting does tend to decrease the magnitude of the perturbation amplitudes. Valuable information about finger tip-splitting behavior can be obtained if one focuses on the time evolution for the harmonic mode. When wetting is absent the sign of the harmonic goes strongly negative although its initial value was zero. In this case the nonlinear coupling naturally enhance tendency toward finger tip splitting. However, when wetting effects are considered the magnitude of the harmonic is decreased, indicating that tip splitting would be inhibit. This points to a nonlinear stabilization of the tip-splitting phenomenon induced by the action of the wetting film.

These findings are reinforced and even more clearly illustrated in Fig. 4, which plots the time evolution of the interface for times $t = 0, 0.5, 1.5, 2.5, 3.5, 4.5, 5.5$ and 6.5 s.

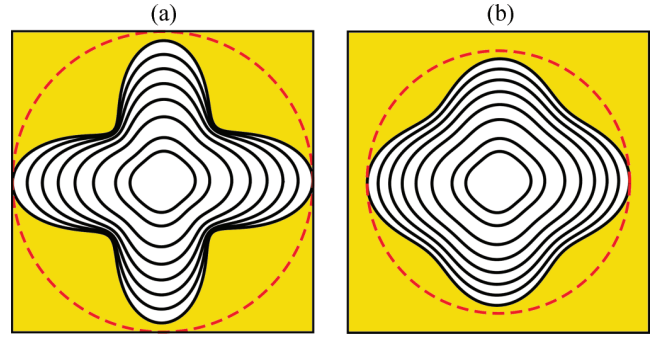


FIG. 6. (Color online) Snapshots of the evolving interface for the interaction of two modes $n = 4$ and $n/2 = 2$ (both sine and cosine) for (a) $\gamma = 0$, and (b) $\gamma = 2/3$. The times shown are the same ones used in Fig. 4. The dashed circle is added to facilitate visualization of finger competition among the outward moving fingers of the inner fluid.

This is done considering the interaction of two cosines modes (a fundamental $n = 4$ and its harmonic $2n = 8$) under the absence (a) and presence (b) of wetting film effects. When wetting is not considered we see typical flowerlike patterns, with the petals presenting tips that clearly split. But, when the wetting film is present, fundamentally different shapes are obtained, and the nonlinear growth of the instability results in the formation of shorter, stubby fingers. In this last case, the usual finger tip-splitting phenomenon is evidently restrained.

2. Finger competition

Now we turn our attention to the effects of the wetting film on finger competition events. Once again, we follow Ref. [8] and consider finger length variability as a measure of the competition among fingers. Within our approach the finger competition mechanism can be described by the influence of a fundamental mode n , assuming n is even, on the growth of its subharmonic mode $n/2$. By using Eqs. (6)–(11) the equations of motion for the subharmonic mode can be written as

$$\dot{a}_{n/2} = \{\lambda(n/2) + C(n)a_n\} a_{n/2}, \quad (16)$$

$$\dot{b}_{n/2} = \{\lambda(n/2) - C(n)a_n\} b_{n/2}, \quad (17)$$

where

$$C(n) = \frac{1}{2} \left[F\left(-\frac{n}{2}, \frac{n}{2}\right) + \lambda(n/2)G\left(\frac{n}{2}, -\frac{n}{2}\right) \right] + \frac{1}{2} \left[F\left(\frac{n}{2}, n\right) + \lambda(n)G\left(\frac{n}{2}, n\right) \right] + \frac{1}{2} \lambda(n)H(n/2) \left[\lambda(n/2) + \frac{Q}{2\pi R^2} \right] + \frac{1}{2} \lambda(n/2)H(n/2) \left[\lambda(n) + \frac{Q}{2\pi R^2} \right]. \quad (18)$$

The action of the subharmonic mode breaks the n -fold rotational symmetry of the fundamental by alternately increasing and decreasing the length of each of the n fingers. In Ref. [8] it has been shown that, under injection-driven radial Hele-Shaw flow (without wetting) cosine modes $a_{n/2}$ grow, and sine modes $b_{n/2}$ decay. The result is an increased variability among

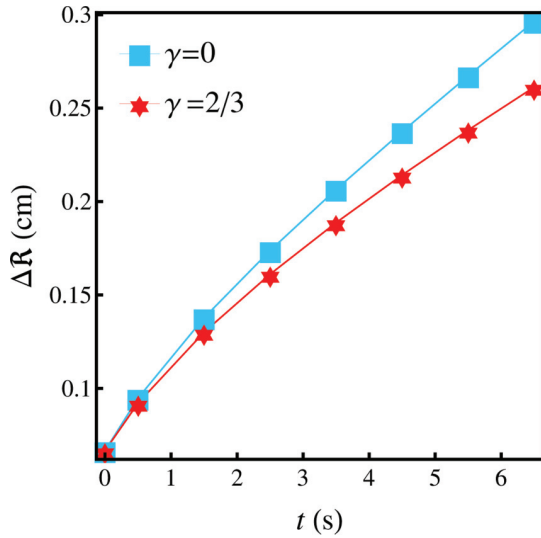


FIG. 7. (Color online) Difference between the interface positions of the finger tips for consecutive outward moving fingers of the inner fluid ΔR as a function of time, for $\gamma = 0$ and $\gamma = 2/3$. This figure uses the same physical parameters utilized in Figs. 5 and 6. It is evident that finger competition is decreased in the presence of wetting effects.

the lengths of the outward moving fingers of the inner fluid invading the outer one. This effect describes the preferential and more intense competition among outward moving fingers.

To get some insight into the effect of wetting on finger competition in Fig. 5 we plot the time evolution of the cosine $a_{n/2}$ and sine $b_{n/2}$ subharmonic amplitudes when wetting effects are ignored ($\gamma = 0$, dashed curves), and taken into account ($\gamma = 2/3$, solid curves). We take the initial amplitudes as $a_{n/2} = b_{n/2} = R_0/30$, and $a_n = R_0/20$. Recall that the finger length variability and the very nature of finger competition depend on the relative magnitudes of sine and cosine subharmonic amplitudes. From Fig. 5 we notice the growth of $a_{n/2}$ over $b_{n/2}$ when $\gamma = 0$. This indicates enhanced competition among the outward moving fingers of the inner fluid, in agreement to what has been obtained in Ref. [8]. When the wetting film effect is considered, one observes that the values of both $a_{n/2}$ and $b_{n/2}$ are lowered (solid curves located below dashed curves), indicating a tendency toward inhibition of finger competition events. We have verified that a similar decrease is detected in the growth of the fundamental mode. These observations indicate that both the size and

finger length variability would be decreased as a result of the wetting effects. This is actually what one can see in Fig. 6, where the time evolution of the interface is plotted. If wetting is neglected [Fig. 6(a)] long fingers of different lengths are formed revealing competition among outward moving fingers of the inner fluid. In contrast, short stubby fingers arise when wetting is taken into consideration [Fig. 6(b)].

However, from a purely visual inspection of Figs. 6(a) and 6(b) it is a bit hard to tell for which situation finger competition is most repressed. A clearer illustration of the time evolution of the finger competition behavior in our system is provided by Fig. 7. It plots the difference in finger lengths for consecutive outward moving fingers of the inner fluid ΔR as a function of time, for the times used in Fig. 6. This is done for the cases without ($\gamma = 0$) and with wetting ($\gamma = 2/3$). One can see that finger length variability (i.e., finger competition) changes more significantly with time in the absence of wetting. Therefore, one concludes that finger competition is indeed diminished by the action of the wetting thin film.

IV. CONCLUDING REMARKS

It is well known that wetting film corrections are necessary to provide a more accurate theoretical description of confined flows in rectangular Hele-Shaw cells [11–17]. Interestingly, the studies of the effects of such corrections in the related problem in radial Hele-Shaw cells are scarce, and limited to the purely linear regime [19,20].

In this work we investigated the role played by wetting film corrections on the linear stability and weakly nonlinear dynamics in injection-driven radial Hele-Shaw flows. By employing a mode-coupling approach we have been able to get analytical insight into the changes introduced by wettability on the basic pattern-forming mechanisms of the problem. Our results indicate that the wetting film plays an important role in the overall stabilization of the fingers, restraining the development of both finger bifurcation and finger length variability. We predict the formation of short, stubby fingering structures when the displaced fluid wets the Hele-Shaw walls under radial flow.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank CNPq for financial support through the program “Instituto Nacional de Ciência e Tecnologia de Fluidos Complexos (INCT-FCx)” and FACEPE through PRONEM project No. APQ-1415-1.05/10.

- [1] P. G. Saffman and G. I. Taylor, *Proc. R. Soc. London A* **245**, 312 (1958).
- [2] For review papers, See G. M. Homsy, *Annu. Rev. Fluid Mech.* **19**, 271 (1987); K. V. McCloud and J. V. Maher, *Phys. Rep.* **260**, 139 (1995); J. Casademunt, *Chaos* **14**, 809 (2004).
- [3] G. Tryggvason and H. Aref, *J. Fluid Mech.* **136**, 1 (1983).
- [4] M. W. DiFrancesco and J. V. Maher, *Phys. Rev. A* **39**, 4709 (1989); **40**, 295 (1989).

- [5] J. A. Miranda and M. Widom, *Int. J. Mod. Phys. B* **12**, 931 (1998).
- [6] L. Paterson, *J. Fluid Mech.* **113**, 513 (1981).
- [7] S. S. S. Cardoso and A. W. Woods, *J. Fluid Mech.* **289**, 351 (1995).
- [8] J. A. Miranda and M. Widom, *Physica D* **120**, 315 (1998).
- [9] J.-D. Chen, *J. Fluid Mech.* **201**, 223 (1989); *Exp. Fluids* **5**, 363 (1989).

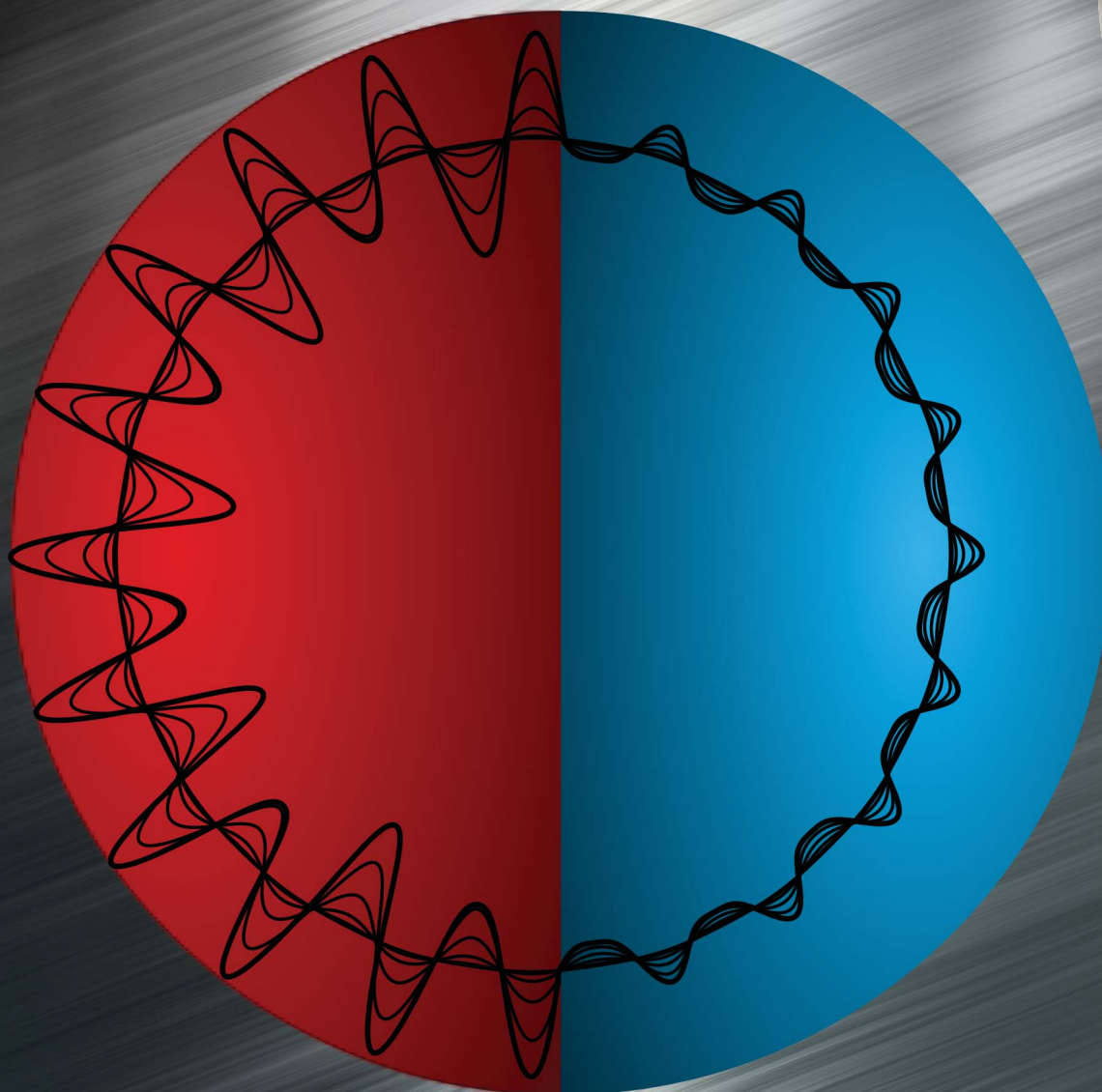
- [10] S. W. Li, J. S. Lowengrub, and P. H. Leo, *J. Comput. Phys.* **225**, 554 (2007).
- [11] F. P. Bretherton, *J. Fluid Mech.* **10**, 166 (1966).
- [12] C.-W. Park and G. M. Homsy, *J. Fluid Mech.* **139**, 291 (1984).
- [13] P. Tabeling and A. Libchaber, *Phys. Rev. A* **33**, 794 (1986).
- [14] L. Schwartz, *Phys. Fluids* **29**, 3086 (1986).
- [15] P. G. Saffman, *J. Fluid Mech.* **173**, 73 (1986).
- [16] D. A. Reinelt, *Phys. Fluids* **30**, 2617 (1987).
- [17] D. A. Reinelt, *J. Fluid Mech.* **183**, 219 (1987).
- [18] E. Alvarez-Lacalle, J. Ortín, and J. Casademunt, *Phys. Rev. E* **74**, 025302(R) (2006).
- [19] L. M. Martyushev and A. I. Birzina, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 045201 (2008).
- [20] E. O. Dias and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **88**, 013016 (2013).
- [21] Ll. Carrillo, J. Soriano, and J. Ortín, *Phys. Fluids* **11**, 778 (1999).
- [22] Ll. Carrillo, J. Soriano, and J. Ortín, *Phys. Fluids* **12**, 1685 (2000).
- [23] T. Maxworthy, *Phys. Rev. A* **39**, 5863 (1989).
- [24] H. Kim, T. Funada, D. D. Joseph, and G. M. Homsy, *Phys. Fluids* **21**, 074106 (2009).
- [25] E. Alvarez-Lacalle, J. Ortín, and J. Casademunt, *Phys. Fluids* **16**, 908 (2004).
- [26] H. Gadêlha and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **79**, 066312 (2009).
- [27] T. Ward and A. R. White, *Phys. Rev. E* **83**, 046316 (2011).

APÊNDICE C:

**Influence of wetting on fingering patterns in lifting
Hele-Shaw flows**

Soft Matter

www.softmatter.org



ISSN 1744-683X



PAPER

Pedro H. A. Anjos and José A. Miranda
Influence of wetting on fingering patterns in lifting Hele-Shaw flows

Cite this: *Soft Matter*, 2014, 10, 7459

Received 13th May 2014

Accepted 4th June 2014

DOI: 10.1039/c4sm01047g

www.rsc.org/softmatter

Influence of wetting on fingering patterns in lifting Hele-Shaw flows

Pedro H. A. Anjos^a and José A. Miranda^b

We study the pattern formation dynamics related to the displacement of a viscous wetting fluid by a less viscous nonwetting fluid in a lifting Hele-Shaw cell. A perturbative weakly nonlinear analysis of the problem is presented. We focus on examining how wetting effects influence the morphology of the emerging interfacial patterns at the early nonlinear regime. Our analytical results indicate that wettability has a significant impact on the resulting nonlinear patterns. It restrains finger length variability while inducing the development of structures presenting short, blunt penetrating fingers of the nonwetting fluid, alternated by short, sharp fingers of the wetting fluid. The basic mode-coupling mechanisms leading to such behavior are discussed.

1 Introduction

It is known that wetting effects are of relevance in the development of pattern formation structures that arise as a result of hydrodynamic instabilities.^{1–4} In particular, this is true for the Saffman–Taylor instability⁵ that occurs when a less viscous fluid displaces a more viscous one in the confined geometry of a Hele-Shaw cell.^{6–8} The fact is that, depending on the nature of the fluids involved they can wet the walls of the Hele-Shaw cell plates, leaving behind a film of finite thickness. In a seminal paper⁹ Park and Homsy have shown that the consideration of such wetting effects leads to nonnegligible corrections in the pressure difference at the fluid–fluid interface. A number of subsequent theoretical and experimental investigations in rectangular Hele-Shaw cells^{10–14} have indicated that the inclusion of wetting effects helps to provide a better match between theory and experiments. This has also been the case for injection-driven flows in the radial Hele-Shaw cell setup.^{15–17} Recently, it has also been proposed that the traditional “fanlike” patterns obtained in radial flows^{18–22} which present fingers that bifurcate and compete would be substituted by stubby fingers of similar lengths, when wetting effects are of significance.²³

Actually, there is another Hele-Shaw cell-type problem in which the influence of wetting is quite important. It is referred to as the rotating Hele-Shaw setup.²⁴ In this situation, the interface instability is not driven by the viscosity contrast between the fluids, but rather by the difference in their densities. In this version of the problem the inner fluid has a larger density, and the Hele-Shaw cell is allowed to rotate about an axis

perpendicular to the plates. Within this context, an interplay between surface tension and centrifugal forces leads to the formation of a variety of pattern morphologies^{25–29} that are very different from the ones detected in viscosity-driven flows. A particularly nice study has been performed in ref. 30, which considered the relevance of wetting in fingering patterns produced in a rotating Hele-Shaw cell. Their fully nonlinear numerical simulations and experiments have demonstrated that wetting effects have a strong impact on the resulting interfacial morphologies. Interface stabilization due to dynamic wetting has also been disclosed.

A third system involving a variant of the usual injection-driven Saffman–Taylor instability has been extensively studied over the past fifteen years and so is the lifting Hele-Shaw cell problem.³¹ In contrast to the injection-driven and centrifugally induced circumstances discussed above, in this modified arrangement the upper cell plate can be lifted, in such a way that the cell gap-width is time-dependent. As the plates separate, the pressure becomes lower in the inner more viscous fluid, and the outer fluid moves in. Then, the fluid–fluid interface rapidly deforms, and peculiar treelike patterns arise.^{32–38} Here the most prominent pattern-forming mechanism is finger competition among the fingers of the invading less viscous fluid. Moreover, these invading fingers are typically wider than the outward pointing fingers of the more viscous fluid.

In spite of the relatively large number of investigation of the lifting Hele-Shaw problem (see ref. 31–38 and references therein), the influence of wetting films on the dynamics of finger competition, and also on the shape of both inward and outward pointing fingers has been overlooked. Just a few groups investigated the role of fluid wettability on the lifting Hele-Shaw problem:^{36,39,40} the early linear dynamic stage problem has been theoretically investigated in ref. 36 and 39, while ref. 40 concentrated on analyzing experimentally the interplay of

^aDepartamento de Física, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, Pernambuco 50670-901, Brazil. E-mail: pedroanjos@df.ufpe.br

^bDepartamento de Física, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, Pernambuco 50670-901, Brazil. E-mail: jme@df.ufpe.br; Fax: +55 81 2126 8450; Tel: +55 81 2126 7610

wetting and other substrate properties at advance time stages of pattern formation. The linear stability analyses performed in ref. 36 and 39 focused on showing that wetting effects are important to allow better theoretical predictions about the number of fingers at the onset of the instability. Therefore, the role played by wetting film effects on intrinsically nonlinear phenomena related to finger competition events, and on the morphology of individual fingers could not be assessed. Motivated by this fact, in this work we carry out a perturbative weakly nonlinear analysis of the lifting Hele-Shaw problem which offers useful analytical insights into the influence of the wetting film on the emerging fingering structures.

Before we proceed, it should be noted that while in ref. 23 we have investigated the influence of wetting thin films on the patterns generated for injection-driven flows in constant-gap Hele-Shaw cells, here we focus on examining the role of wettability on the patterned structures which arise during lifting flows in a variable-gap Hele-Shaw setup. It is well known that the resulting nonlinear pattern morphologies in the usual injection-driven Hele-Shaw case are very different from the ones obtained in the lifting Hele-Shaw problem. For instance, phenomena like finger tip-splitting are very frequent in the injection-driven problem, but are completely absent in the lifting case.^{32–38} Moreover, in contrast to the injection-driven case (where pressure is Laplacian) the pressure field in the lifting flow situation is non-Laplacian.³¹ In addition, the own nonlinear nature of both problems does not allow one to make *a priori* predictions about possible similarities in the response of both systems to wetting film effects. Finally, to the best of our knowledge, a study about the role of wetting in lifting Hele-Shaw systems is still lacking. All these facts motivated us to perform our current study.

The rest of this paper is organized as follows. In Section 2 we use a perturbative weakly nonlinear approach originally proposed in ref. 20 and 41 to obtain a mode-coupling differential equation that describes the time evolution of the interfacial perturbation amplitudes up to second-order. We concentrate our attention on the incorporation of wetting film effects into the lifting Hele-Shaw problem, and examine how wettability influences the intrinsically nonlinear mechanisms of the pattern-forming dynamics. Contrary to purely linear stability analyses, which mainly provide information about the stability on the fluid–fluid interface, our weakly nonlinear approach permits analytical assess to the morphology of the patterns at the early nonlinear regime. The role played by the wetting thin film in regulating these important nonlinear aspects is discussed in Section 3. Finally, Section 4 presents our concluding remarks.

2 Governing equations and weakly nonlinear calculation

We consider a Hele-Shaw cell of a time-dependent gap width $b(t)$ containing a more viscous fluid of viscosity η_1 , surrounded by a less viscous fluid of viscosity η_2 [Fig. 1]. The fluids are Newtonian and immiscible, and the surface tension between them is

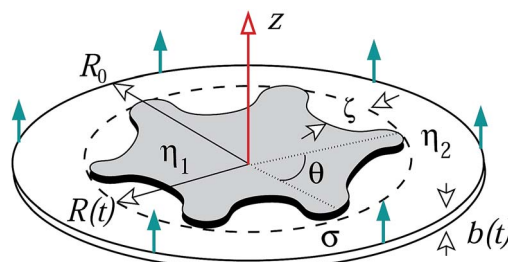


Fig. 1 Representative sketch of the lifting flow in a radial Hele-Shaw cell.

denoted by σ . The upper cell plate can be lifted along the direction perpendicular to the plates (z -axis), and the lower plate is held fixed. The initial fluid–fluid interface is circular, having radius $R_0 = R(t = 0)$ and initial gap thickness $b_0 = b(t = 0)$. By using volume conservation the time dependent radius of the unperturbed interface is given by

$$R(t) = R_0 \sqrt{\frac{b_0}{b(t)}}. \quad (1)$$

As in ref. 9–17 our weakly nonlinear theory is developed with the assumption that fluid 1 wets the walls of the Hele-Shaw cell, leaving behind a thin wetting film. Fluid 2 is nonwetting.

Since during the lifting process the less viscous fluid pushes the more viscous one, the Saffman–Taylor instability takes place, and the fluid–fluid interface deforms. The perturbed fluid–fluid interface is described as $\mathcal{R}(\theta, t) = R(t) + \zeta(\theta, t)$, where θ represents

the azimuthal angle. Here, $\zeta(\theta, t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \zeta_n(t) \exp(in\theta)$ is the net

interface perturbation with Fourier amplitudes $\zeta_n(t)$, and discrete wavenumbers n . Our perturbative approach keeps terms up to the second-order in ζ . In the Fourier expansion of ζ we include the $n = 0$ mode to maintain the area of the perturbed shape independent of the perturbation ζ . Mass conservation imposes that the zeroth mode is written in terms of other modes as $\zeta_0 = -(1/2R) \sum_{n \neq 0} |\zeta_n(t)|^2$.

In the lifting Hele-Shaw cell setup the flow is governed by two equations: a gap-averaged Darcy-law^{5–8}

$$\mathbf{v}_j = -\frac{b^2(t)}{12\eta_j} \nabla p_j, \quad (2)$$

and a gap-averaged incompressibility condition³¹

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_j = -\frac{\dot{b}(t)}{b(t)}. \quad (3)$$

In eqn (2) $\mathbf{v}_j = \mathbf{v}_j(r, \theta)$ and $p_j = p_j(r, \theta)$ denote the velocity and pressure in fluids $j = 1, 2$, respectively. Moreover, in eqn (3) $\dot{b}(t) = db(t)/dt$ is the upper plate velocity along the z -axis. As in most experimental and theoretical studies in lifting Hele-Shaw flows^{32–38} we consider a constant lifting speed $\dot{b}(t) = \dot{b} = V$, so that $b(t) = b = b_0 + Vt$.

At this point we briefly comment on the validity of the gap-averaged Darcy's law description for the lifting Hele-Shaw problem. Despite the intrinsic three-dimensional nature of the problem, one should consider that the upper plate is not being lifted fast enough to provoke any inertial effects, nor lifted high enough to alter the system being of a large aspect ratio.^{31,39} The gap width $b(t)$ is always far smaller than the radius of the unperturbed fluid–fluid interface $R(t)$, so that $R(t)/b(t) \gg 1$. As a matter of fact, this is precisely the flow regime investigated by laboratory experiments in lifting Hele-Shaw cells.^{32–38} The reliability of the gap-averaged effectively-two-dimensional approach is further substantiated by the similarity between the numerical simulations employing Darcy's law equations with the corresponding interfacial patterns obtained experimentally.^{31,37,38} In these studies it has been found that the Darcy's law model satisfactorily accounts for the initial, intermediate, and fully nonlinear evolution of the observed fingering patterns.

From the irrotational nature of the flow ($\nabla \times \mathbf{v}_j = 0$) one can define the velocity potential ϕ_j ($\mathbf{v}_j = -\nabla\phi_j$). It can be readily verified that ϕ_j obeys the Poisson equation $\nabla^2\phi_j = \dot{b}/b$, having the solution

$$\phi_j(r, \theta) = \frac{\dot{b}r^2}{4b} + \sum_{n \neq 0} \phi_{jn}(t) \left(\frac{r}{R}\right)^{-(1+j+1)|n|} e^{in\theta}. \quad (4)$$

To find the relationship between $\phi_{jn}(t)$ and $\zeta_n(t)$, we apply the kinematic boundary condition

$$\frac{\partial \mathcal{R}}{\partial t} = \left(\frac{1}{r^2} \frac{\partial \mathcal{R}}{\partial \theta} \frac{\partial \phi_j}{\partial \theta}\right) - \left(\frac{\partial \phi_j}{\partial r}\right), \quad (5)$$

which states that the normal components of each fluid velocity are continuous at the interface.^{6–8,18}

The contributions coming from surface tension and wetting effects are included in a generalized Young–Laplace pressure boundary condition, which expresses the pressure jump across the fluid–fluid interface^{9–17,23,30}

$$p_1 - p_2 = \frac{\pi}{4} \sigma \kappa + \frac{2\sigma}{b} \left[\cos \theta_c - J \left(\frac{\eta_1 v_n}{\sigma} \right)^\gamma \right]. \quad (6)$$

The first term on the right-hand side (RHS) of eqn (6) represents the contribution related to surface tension and the interfacial curvature κ in the plane of the Hele-Shaw cell. The factor $\pi/4$ is purely a capillary static effect, coming from the z-average of the mean interfacial curvature. The second term on the RHS of eqn (6) accounts for the contribution of the constant curvature associated with the interface profile in the direction perpendicular to the Hele-Shaw cell plates, set by the static contact angle θ_c measured between the plates and the curved meniscus. Recall that we consider that the nonwetting fluid (fluid 2) displaces the wetting one (fluid 1), so that $\theta_c = \pi$. Finally, the third term on the RHS of (6) considers the effect of a thin wetting film trailing behind the displaced fluid, where v_n is the normal component of the interface velocity, $J = 3.8$, and $\gamma = 2/3$. This third term is crucial to this paper, and it has been originally proposed by a prior theoretical work by Park and Homsy.⁹ They were the first to conduct such a theoretical

analysis by combining Bretherton's lubrication approximation⁴² with the Saffman–Taylor equations,⁶ *via* double asymptotic expansion of the ratio of the film thickness to the transverse characteristic length and the capillary number raised to 1/3. Following Park and Homsy's analysis the existing experimental and theoretical results were reconciled, thereby elucidating the important role of the wetting film in the nonlinear finger formation process.

It should be noticed that in the lifting Hele-Shaw flow all parts of the fluid–fluid front recede. This fact is clearly illustrated in Fig. 4 of ref. 38, and in Fig. 2, 3, and 8 of ref. 37. This situation is very different to what happens in rotating Hele-Shaw flows,³⁰ where some parts of the front recede while others advance. In this last case the advancing portions explore dry regions of the plates, and the contact angle should be treated as a dynamic variable.

Following canonical steps performed in previous weakly nonlinear studies for Hele-Shaw flows,^{20,41} first we define Fourier expansions for the velocity potentials. Then, we express ϕ_j in terms of the perturbation amplitudes ζ_n by considering condition (5). Substituting these relationships, and the pressure jump condition eqn (6) into Darcy's law eqn (2), always keeping terms up to the second-order in ζ , and Fourier transforming, we find (after some algebra) the equation of motion for the perturbation amplitudes (for $n \neq 0$)

$$\begin{aligned} \dot{\zeta}_n = \lambda(n)\zeta_n + \sum_{n' \neq 0} \left\{ F(n, n') \zeta_{n'} \zeta_{n-n'} + G(n, n') \dot{\zeta}_{n'} \zeta_{n-n'} \right. \\ \left. + H(n) \left[\dot{\zeta}_{n'} \dot{\zeta}_{n-n'} + \frac{\dot{b}}{2b} \zeta_{n'} \dot{\zeta}_{n-n'} \right] \right\} \end{aligned} \quad (7)$$

where

$$\lambda(n) = \frac{1}{1+w(n)} \left[-\frac{\dot{b}}{2b} (1+A|n|) - \frac{\pi\sigma b^2(1-A)}{96\eta_1 R^3} |n|(n^2-1) \right], \quad (8)$$

is the linear growth rate, $A = (\eta_2 - \eta_1)/(\eta_2 + \eta_1)$ is the viscosity contrast, and

$$w(n) = \gamma |n| J \frac{(1-A)}{12} \frac{b}{R} \left(\frac{2b\sigma}{\eta_1 R} \right)^{1-\gamma} \quad (9)$$

is related to the wetting film contribution.

The second-order mode-coupling terms are given by

$$\begin{aligned} F(n, n') = \frac{1}{1+w(n)} \left\{ \frac{|n|}{R} \left[\frac{A\dot{b}}{2b} \left[\frac{1}{2} - \text{sgn}(nn') \right] \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{\pi b^2 \sigma (1-A)}{96\eta_1 R^3} \left[1 - \frac{n'}{2} (3n' + n) \right] - \frac{\dot{b}}{2b} \frac{1}{|n|} \right] \right. \\ \left. + \frac{\dot{b}}{2b} \frac{w(n)}{2R} n' (n - n') \right\}, \end{aligned} \quad (10)$$

$$G(n, n') = \frac{1}{1 + w(n)} \left\{ \frac{1}{R} [A|n| [1 - \text{sgn}(nn')] - 1] - \frac{w(n)(\gamma - 1)}{2R} \right\} \quad (11)$$

and

$$H(n) = \frac{w(n)}{1 + w(n)} \frac{b}{bR} (\gamma - 1), \quad (12)$$

where the sgn function equals ± 1 according to the sign of its argument.

The expressions (7)–(12) represent the mode-coupling equations of the viscous fingering problem in a lifting Hele-Shaw cell, taking into consideration the contributions from wetting film effects. As commented in Section 1, this set of coupled nonlinear equations opens up the possibility of investigating analytically how the morphology of the evolving fluid–fluid interface responds to the action of thin film wettability. It should be noted that the linear growth rate [eqn (8) and (9)] was originally obtained in ref. 39. Note that the situation in which wetting effects are neglected can be readily obtained by setting $\gamma = 0$. In this case we do recover the linear growth rate derived in the literature in the absence of wetting effects.^{31,36}

3 Wetting film effects – weakly nonlinear behavior.

This section demonstrates the usefulness of our weakly nonlinear analysis in elucidating key aspects related to finger shape behavior and finger competition under the action of wetting film effects. We use our mode-coupling approach to investigate the interface evolution at second-order. At this point, it is convenient to rewrite the net perturbation ζ in terms of cosine and sine modes

$$\zeta(\theta, t) = \zeta_0 + \sum_{n=1}^{\infty} [a_n(t) \cos(n\theta) + b_n(t) \sin(n\theta)], \quad (13)$$

where $a_n = \zeta_n + \zeta_{-n}$ and $b_n = i(\zeta_n - \zeta_{-n})$ are real-valued. Without the loss of generality we may choose the phase of the fundamental mode so that $a_n > 0$ and $b_n = 0$.

In order to maintain our theoretical analysis as close as possible to real life lifting Hele-Shaw experimental studies, we emphasize that the values we take for our parameters throughout the rest of this work are consistent with typical physical quantities used in such experiments.^{31–38} For an exhaustive listing of all typical values of the relevant physical quantities we refer the reader to Table 1 presented in ref. 38. There one can verify that the lifting Hele-Shaw experiments use highly viscous fluids [with viscosities as high as 101.7 Pa s], and very small initial gap spacings [as small as 1 μm]. Here we consider the growth of fingers in the most unstable situation ($A \rightarrow -1$), as air [$\eta_2 \approx 0$] displaces a very viscous silicone oil [$\eta_1 \approx 100$ Pa s]. The initial thickness of the cell $b_0 = 50$ μm and the surface tension between the fluids $\sigma = 0.02$ N m^{-1} . Moreover, the lifting velocity $V = 2.5$ μm . The initial radius

$R_0 = 3.0 \times 10^{-3}$ m and the evolution of the interfaces we consider run up to time $t = 19$ s.

In a popular review article, Homsy^{6–8} has identified the main growth mechanisms of the viscous fingering process in injection-driven Hele-Shaw flows as being spreading, splitting, and competition. Some time ago Miranda and Widom^{20,41} have shown that these basic mechanisms could be consistently mimicked by considering the weakly nonlinear coupling of just a few participating modes: finger competition events (or, finger length variability) could be described by the interaction of a fundamental mode n and its sub-harmonic $n/2$, while the shape of the fingers (finger widening and narrowing) could be given by the interplay between the fundamental mode n and its first-harmonic $2n$. Here we use this simple picture in order to get some insight into the morphology and early nonlinear features of the patterns generated in a lifting Hele-Shaw cell, when wetting effects are neglected ($\gamma = 0$, see Fig. 2), and when wetting effects are of relevance ($\gamma = 2/3$, see Fig. 3).

Fig. 2 and 3 are plotted by considering the simultaneous coupling of the Fourier modes $n = 20$, $n/2 = 10$, and $2n = 40$. We take the initial amplitudes as $a_n(0) = R_0/1000$, $a_{n/2}(0) = b_{n/2}(0) = R_0/3000$, and $a_{2n}(0) = 0$. In (a), the interfaces are plotted for $0 \leq t \leq 19$ s, at equal time intervals $\Delta t = 3.8$ s. In (b) close-up sections of the interfaces (angular sector $0 \leq \theta \leq \pi/2$) at the final time $t = 19$ s are shown. This is done to facilitate visualization and offer more details about the final interfacial shapes. The only difference between these figures is that Fig. 2 neglects wetting effects (by setting $\gamma = 0$), while Fig. 3 takes these effects under consideration by taking $\gamma = 2/3$.

It is worth pointing out that the values for the initial perturbation amplitudes used to plot Fig. 2 and 3 are selected in such a way that the amplitudes for the sub-harmonics $a_{n/2}$ and $b_{n/2}$ (responsible for inducing finger competition), and first harmonic a_{2n} (responsible for setting the finger shape as wide or narrow) are considerably smaller than the amplitude of the fundamental mode a_n , so that $a_n(0) > a_{n/2}(0) = b_{n/2}(0)$, and $a_n(0) > a_{2n}(0) = 0$. The initial amplitudes for the sub-harmonic sine and cosine modes are set to be equal to avoid any preferential growth of these modes, while the first harmonic cosine mode is initially set to zero, to let the dynamics dictate its growth and phase as time progresses (as we will see in Section 3.2 the first harmonic sine mode does not present nonlinear couplings). Note that the fundamental mode mostly sets the initial n -fold symmetry for the pattern. This is done to avoid artificial growth of modes $a_{n/2}$, $b_{n/2}$, and a_{2n} imposed solely by the initial conditions. This way, the phenomenon of finger competition and finger-broadening that we study are spontaneously induced by the weakly nonlinear dynamics, and not by artificially imposing large initial amplitudes for $a_{n/2}$, $b_{n/2}$ and a_{2n} . Moreover, we stress that other combinations for the initial amplitudes (that obey the requirements mentioned above) do result in similar nonlinear features.

Unfortunately, we are not able to perform direct quantitative comparisons between our predicted theoretical weakly nonlinear shapes (as the ones depicted in Fig. 2 and 3) with equivalent interfacial patterns exhibited by real experiments and simulations. The reason for this impediment is that the

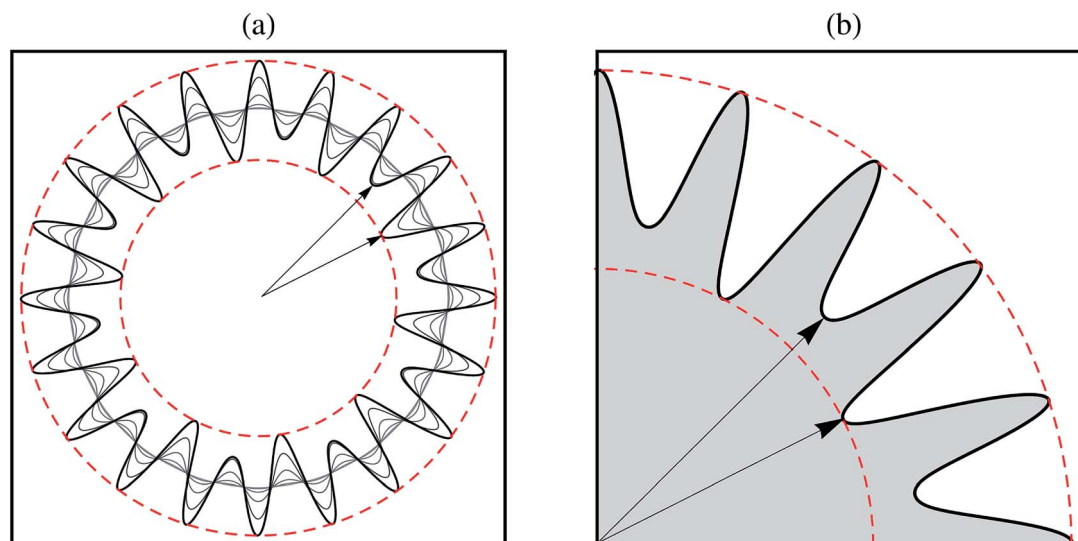


Fig. 2 (a) Snapshots of the evolving interface, plotted at equal time intervals for the interaction of the fundamental mode n , its sub-harmonic $n/2$, and its first-harmonic $2n$, when wetting effects are not present ($\gamma = 0$). Darker colors mean later times. The dashed curves are added to better guide the eye regarding finger competition events. The arrows indicate the radial position of inward pointing fingers. (b) Close-up view (angular sector $0 \leq \theta \leq \pi/2$) of the resulting interface.

existing laboratory experiments and numerical simulations mostly focus on the fully nonlinear stages of pattern evolution, where the finger sizes are very large, and the finger shapes are considerably complex. For a typical illustration of this fact, see Fig. 3 of a recent lifting Hele-Shaw experiment³⁸ where at $t' = 25$ an already nonlinear shape is depicted, while at $t' = 10$ ones has a quite unperturbed, initial time, linear morphology (where linear stability analysis applies). In this context, a legitimate weakly morphology could be found for the time interval $10 < t' < 25$, but it is not shown. These remarks are also

applied for numerical simulations of the problem (see, for instance, Fig. 3 of ref. 37). Our perturbative weakly nonlinear analysis holds at the onset of nonlinearities, where the interfacial disturbances ζ must be significantly smaller than the corresponding unperturbed interfacial radius $R(t)$. Despite its limitations, the weakly nonlinear approach²⁰ is still useful, in the sense that it can predict analytically the most important nonlinear behavior that will eventually be revealed at advanced time stages of the Hele-Shaw dynamics.^{27,29}

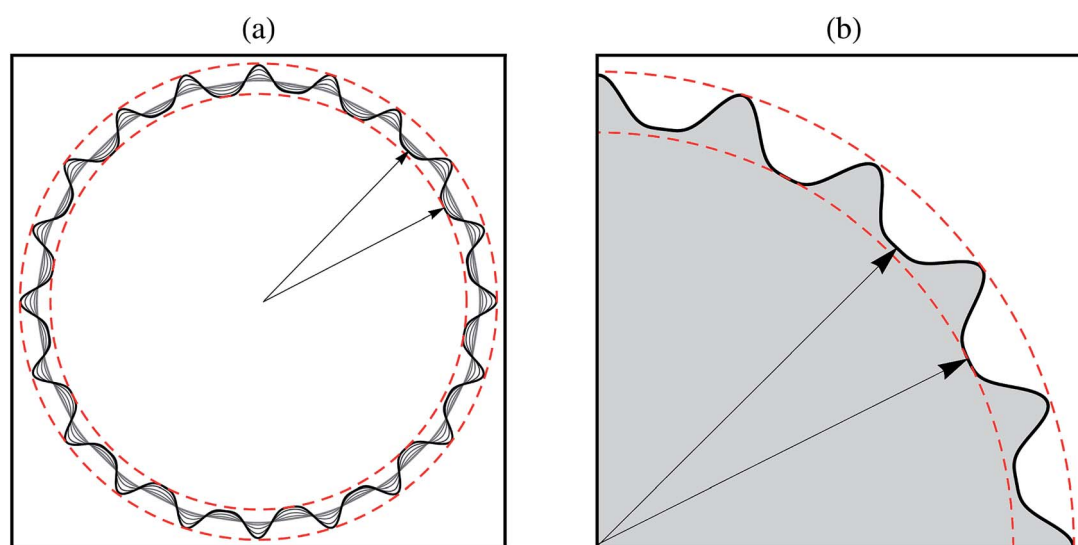


Fig. 3 (a) Snapshots of the evolving interface, plotted at equal time intervals for the interaction of the fundamental, n , its sub-harmonic $n/2$, and its first-harmonic $2n$, when wetting effects are of relevance ($\gamma = 2/3$). Darker colors mean later times. The dashed curves are added to better guide the eye regarding finger competition events. The arrows indicate the radial position of inward pointing fingers. (b) Close-up view (angular sector $0 \leq \theta \leq \pi/2$) of the resulting interface.

Having all this in mind, we begin our discussion by examining Fig. 2(a) which considers that $\gamma = 0$: one can see that the inward pointing fingers of the outer fluid present different lengths, indicating the presence of finger competition among them. The dashed circular curves are added to allow a better visualization of the finger competition events: note that some inward pointing fingers of the penetrating fluid touch the inner dashed line, while other inward pointing fingers do not. On the other hand, the fingers of the inner fluid pointing outward have nearly similar sizes (all touch the outer dashed circular curve), indicating that competition among these fingers is repressed. So, the fact is that when wetting effects are neglected, one observes a finger competition phenomenon (presence of fingers of different lengths) among inward pointing fingers (this is clearly indicated by the arrows shown in Fig. 2(a)).

The resulting patterned shape illustrated in Fig. 2(a) shows a quite unstable starburstlike structure where inward moving fingers clearly compete. Moreover, by inspecting Fig. 2(b) in close-up one can actually verify that the inward pointing fingers of the less viscous fluid are just a bit wider than the outward pointing fingers of the more viscous fluid. These two main nonlinear features revealed by Fig. 2 (strong competition among inward pointing fingers, and the fact that they are slightly wider) are in qualitative agreement with the ones detected at more advanced time regimes by experiments and simulations in lifting Hele-Shaw cells.^{31–38} However, even though these laboratory and numerical experiments show a clear finger length variability, the observed inward pointing fingers are notably wider than the outward pointing ones.

Now we turn to Fig. 3 which plots (a) the time evolution, and (b) the close-up view of part of the final pattern obtained in the case where the wetting effects are of importance ($\gamma = 2/3$). Recall that all physical quantities (except γ) and initial conditions used to get Fig. 3 are identical to the ones utilized to produce Fig. 2. Inspection of Fig. 3(a) shows that the time evolution under the presence of wetting is considerably different from the equivalent situation that neglected wetting (Fig. 2(a)). One first noteworthy feature is indicated by the arrows, revealing that the finger length variability among inward pointing fingers is reduced as compared to the situation that neglects wetting. This is also true for the outward pointing fingers (all of them touch the external dashed circular curve). We see that even though finger competition of inward pointing fingers is still present in Fig. 3, it is restrained relative to the situation shown in Fig. 2 through the action of wetting effects. It is true that both morphological features (competition and wideness of inward pointing fingers) as shown by Fig. 2 and 3 are still quite small. This is not really surprising since our perturbative mode-coupling theory is only able to access the onset of nonlinear effects.

In addition, the final patterned shape depicted in Fig. 3(b) is clearly different from the starburstlike structure obtained in Fig. 2(b). Now we observe a more stable pattern formed by shorter fingers, in which the wide inward pointing fingers of the penetrating fluid are alternated by the sharp, outward pointing fingers of the inner fluid. Furthermore, the fact that the inward pointing fingers evidently wider is in better

qualitative agreement with the findings of ref. 31–38 than the case without wetting. When wetting effects are taken into account we end up with patterned structures which present some (but small) competition among inward pointing fingers, which are actually wider than the outward pointing ones. From the analysis of Fig. 2 and 3 we can say that the pattern formation dynamics is evidently sensitive to the wetting condition in the lifting Hele-Shaw problem, and leads to different pattern morphologies.

Although one should not expect to get a quantitative match between the pattern shown in Fig. 3 (that just contains 3 Fourier modes, and is just weakly nonlinear) and the actual fully nonlinear patterns obtained in ref. 31–38 it is reassuring to see that our simple mode-coupling method is able to capture the most salient features of the fully nonlinear dynamics, namely, some competition and clear wideness of the inward pointing fingers. In the next two sub-sections we will discuss in a more quantitative way the basic mode-coupling mechanisms leading to the nonlinear morphological behaviors illustrated in Fig. 2 and 3.

3.1 Finger competition behavior

First, we focus on the effects of the wetting film on finger competition events. We follow ref. 20 and consider finger length variability as a measure of the competition among fingers. Within our approach the finger competition mechanism can be described by the influence of a fundamental mode n , assuming n is even, on the growth of its sub-harmonic mode $n/2$. By using eqn (7)–(12) the equations of motion for the sub-harmonic mode can be written as

$$\dot{a}_{n/2} = \{\lambda(n/2) + C(n,t)\}a_{n/2}, \quad (14)$$

$$\dot{b}_{n/2} = \{\lambda(n/2) - C(n,t)\}b_{n/2}, \quad (15)$$

where

$$\begin{aligned} C(n,t) = & \left\{ \frac{1}{2} \left[F\left(-\frac{n}{2}, \frac{n}{2}\right) + \lambda(n/2) G\left(\frac{n}{2}, -\frac{n}{2}\right) \right] + \frac{1}{2} \left[F\left(\frac{n}{2}, n\right) \right. \right. \\ & \left. \left. + \lambda(n) G\left(\frac{n}{2}, n\right) \right] + \frac{1}{2} \lambda(n) H(n/2) \left[\lambda(n/2) + \frac{\dot{b}}{2b} \right] \right. \\ & \left. + \frac{1}{2} \lambda(n/2) H(n/2) \left[\lambda(n) + \frac{\dot{b}}{2b} \right] \right\} a_n. \end{aligned} \quad (16)$$

Observing eqn (14) and (15), and recalling that $a_n > 0$, we verify that $C(n,t) > 0$ increases the growth of the cosine sub-harmonic $a_{n/2}$, while inhibiting growth of its sine sub-harmonic $b_{n/2}$. The result is an increased variability among the lengths of fingers of fluid 1 pushing the less viscous fluid 2. This effect describes enhanced competition of the outward pointing fingers of fluid 1. Sine modes $b_{n/2}$ would vary the lengths of fingers of fluid 2 penetrating into fluid 1, but it is clear from eqn (15) that their growth is suppressed if $C(n,t) > 0$.

Reversing the sign of $C(n,t)$ would exactly reverse these conclusions, such that modes $b_{n/2}$ would be favored over modes $a_{n/2}$. Therefore, $C(n,t) < 0$ would indicate increased competition among the inward moving fingers of fluid 2. Regardless of its sign, the magnitude of the function $C(n,t)$ as given by eqn (16) measures the strength of the competition: increasingly larger values of $C(n,t)$ lead to enhanced finger competition. The validity and correctness of this simple finger competition mechanism during advanced time stages in Hele-Shaw flows have been extensively tested by numerical simulations.^{27,29}

To examine the influence of wetting effects on the finger competition behavior at second-order, in Fig. 4 we plot $C(n,t)$ as a function of time, considering the absence ($\gamma = 0$) and presence ($\gamma = 2/3$) of a thin wetting film. The parameters used to plot this figure are exactly the ones utilized in Fig. 2 and 3. We consider the coupling between two Fourier modes ($n = 20$ and $n/2 = 10$).

From Fig. 4 we notice that either in the absence or in the presence of wetting, the finger competition function $C(n,t)$ assumes only negative values for $t > 0$. From our discussion above this would indicate favored finger competition among the inward pointing fingers of the less viscous, penetrating fluid. Moreover, it is also evident that this finger competition should be less intense (but not absent) when wetting effects are of importance (the dashed curve is far below the solid one for longer times). In other words, we can say that by neglecting wetting effects one would be overestimating finger competition among the inward moving fingers. As expected, the predictions of Fig. 4 are in full agreement with the finger competition behavior observed in Fig. 2 and 3, reinforcing the validity of our finger competition mechanism.

3.2 The shape of the fingers

Here we study a mechanism that controls the finger shape behavior at the weakly nonlinear level. Once again we describe

this particular nonlinear feature by considering the coupling of a small number of modes.²⁰ It turns out that finger tip-narrowing and tip-broadening phenomena can be described by considering the influence of a fundamental mode n on the growth of its harmonic $2n$. Under these circumstances, the equations of motion for the cosine and sine modes of the harmonic are

$$\dot{a}_{2n} = \lambda(2n) a_{2n} + \frac{1}{2} T(n,t) a_n^2, \quad (17)$$

$$\dot{b}_{2n} = \lambda(2n) b_{2n}, \quad (18)$$

where

$$T(n,t) = \left\{ F(2n,n) + \lambda(n)G(2n,n) + H(2n)\lambda(n) \left[\lambda(n) + \frac{\dot{b}}{2b} \right] \right\}, \quad (19)$$

in the finger tip function. From eqn (18) we can see that the growth of the sine mode b_{2n} is uninfluenced by a_n , and does not present second-order couplings, so we focus on the growth of the cosine mode. The interesting point about the function $T(n,t)$ is that it controls the finger shape behavior. The sign of $T(n,t)$ dictates whether finger tip-widening or finger tip-narrowing is favored by the dynamics. From eqn (17) we see that if $T(n,t) > 0$, the result is a driving term of the order a_n^2 forcing growth of $a_{2n} > 0$, the sign that is required to cause the inward-pointing fingers to become wide, favoring finger tip-broadening. In contrast, if $T(n,t) < 0$ growth of $a_{2n} < 0$ would be favored, leading to inward-pointing finger tip-narrowing.

To analyze the influence of wetting on the shapes of both inward and outward pointing fingers at second-order, in Fig. 5 (on the top) we plot the behavior of $T(n,t)$ as a function of time, for the coupling between two Fourier modes ($n = 20$ and $2n = 40$). This is done for the situations in which wetting is

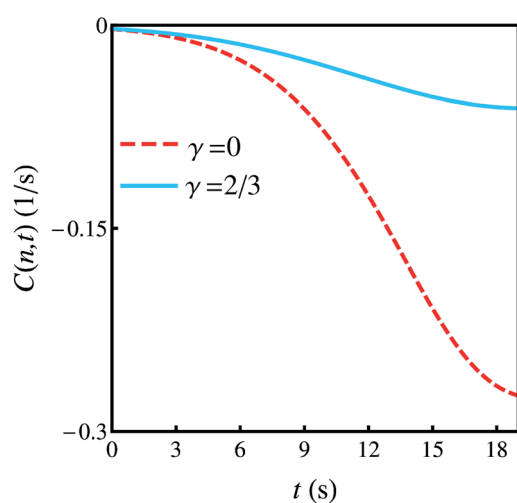


Fig. 4 Time evolution of the finger competition function $C(n,t)$ when wetting effects are neglected ($\gamma = 0$, dashed curve), and when they are taken into consideration ($\gamma = 2/3$, solid curve).

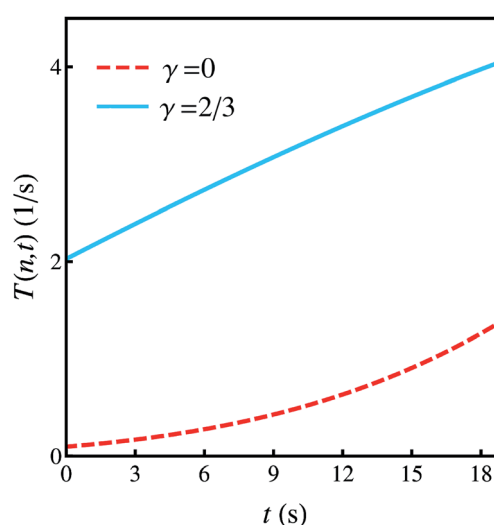


Fig. 5 Variation of the finger tip function $T(n,t)$ with time t . The dashed (solid) curves are plotted for $\gamma = 0$ ($\gamma = 2/3$).

neglected ($\gamma = 0$, dashed curve) and taken into account ($\gamma = 2/3$, solid curve). Once again, the parameters used to plot this figure are exactly the ones used in Fig. 2 and 3. We readily verify that the finger tip function $T(n, t)$ is always positive regardless of the value of γ . From our previous discussion about the role of $T(n, t)$ this would indicate that the inward pointing fingers should be wider than the outward pointing fingers. However, we see that the $T(n, t)$ curve in the presence of wetting (solid curve) lies considerably above the corresponding curve (dashed curve) when wetting is absent. This means that in the presence of wetting the inward pointing fingers would be significantly wider than those formed in the absence of wetting.

As a matter of fact, this is exactly the behavior previously shown in the closed-up sections of the interfaces depicted in Fig. 2(b) and 3(b). By examining these figures it is evident that when $\gamma = 2/3$ the inward pointing fingers are much wider than the outward pointing fingers. In addition, the resulting fingering structures arising when $\gamma = 2/3$ are shorter than the ones produced when $\gamma = 0$. All these findings support the idea that wetting effects have an important effect on the shape of both inward and outward pointing fingers.

4 Conclusions

Existing theoretical and experimental studies have shown that wetting effects can be of importance in the understanding of the pattern formation dynamics in injection-driven^{10–17,23} and centrifugally-induced³⁰ flows in Hele-Shaw cells. In this work, we add to this list of investigations, by examining, the role of wettability in determining the morphology of emerging pattern-forming structures under lifting Hele-Shaw flow circumstances. In this scenario, we consider the flow of a viscous wetting fluid surrounded by a less viscous nonwetting one in a Hele-Shaw cell for which the upper plate can be lifted, so that its gap-width is time-dependent.

We tackled the problem by performing a perturbative weakly nonlinear analysis of the system up to second-order. This method permits exploration of relevant nonlinear features of the sucked fluid-fluid interface analytically. Our theoretical results indicate that wetting effects can have great impact on the resulting pattern morphologies. More specifically, we predicted the formation of patterns in which fingers compete, leading to the formation of interfacial shapes where short, blunt fingers of the nonwetting outer fluid are alternated by short sharp fingers of the wetting inner fluid. We have shown that the basic pattern forming mechanisms connected to such peculiar nonlinear aspects of the interface can be revealed and qualitatively interpreted through the coupling of a few participating interfacial Fourier modes. These theoretical predictions do capture the most salient morphological features detected in lifting Hele-Shaw flow experiments.^{32–38} If wetting effects are neglected, the final patterned structures would present an overestimated competition, while the inward pointing fingers would be just slightly wider than the outward pointing ones.

Confirmation of our predictions and access to additional information about the suggestive nonlinear aspects identified in this analytic work should be possible from new laboratory

experiments as well as fully nonlinear numerical simulations of the lifting problem that focus on circumstances in which wetting effects are of relevance.

Acknowledgements

We thank CNPq for financial support through the program “Instituto Nacional de Ciência e Tecnologia de Fluidos Complexos (INCT-FCx)”, and FACEPE through PRONEM project no. APQ-1415-1.05/10.

References

- 1 P. G. de Gennes, *Rev. Mod. Phys.*, 1985, **57**, 827–863.
- 2 F. Melo, J. F. Joanny and S. Fauve, *Phys. Rev. Lett.*, 1989, **63**, 1958–1961.
- 3 J. A. Diez and L. Kondic, *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **86**, 632–635.
- 4 M. A. Fardin, O. M. Rossier, P. Rangamani, P. D. Avigan, N. C. Gauthier, W. Vonnegut, A. Mathur, J. Hone, R. Iyengar and M. P. Sheetz, *Soft Matter*, 2010, **6**, 4788–4799.
- 5 P. G. Saffman and G. Taylor, *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, 1958, **245**, 312–329.
- 6 G. M. Homsy, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 1987, **19**, 271–311.
- 7 K. McCloud and J. Maher, *Phys. Rep.*, 1995, **260**, 139–185.
- 8 J. Casademunt, *Chaos*, 2004, **14**, 809–824.
- 9 C.-W. Park and G. M. Homsy, *J. Fluid Mech.*, 1984, **139**, 291–308.
- 10 P. Tabeling and A. Libchaber, *Phys. Rev. A*, 1986, **33**, 794–796.
- 11 L. Schwartz, *Phys. Fluids*, 1958–1988, **1986**(29), 3086–3088.
- 12 P. G. Saffman, *J. Fluid Mech.*, 1986, **173**, 73–94.
- 13 D. A. Reinelt, *Phys. Fluids*, 1958–1988, **1987**(30), 2617–2623.
- 14 D. A. Reinelt, *J. Fluid Mech.*, 1987, **183**, 219–234.
- 15 T. Maxworthy, *Phys. Rev. A*, 1989, **39**, 5863–5866.
- 16 L. M. Martyushev and A. I. Birzina, *J. Phys.: Condens. Matter*, 2008, **20**, 045201.
- 17 E. O. Dias and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2013, **88**, 013016.
- 18 L. Paterson, *J. Fluid Mech.*, 1981, **113**, 513–529.
- 19 J.-D. Chen, *J. Fluid Mech.*, 1989, **201**, 223–242.
- 20 J. A. Miranda and M. Widom, *Phys. D*, 1998, **120**, 315–328.
- 21 J. Mathiesen, I. Procaccia, H. L. Swinney and M. Thrasher, *Europhys. Lett.*, 2006, **76**, 257.
- 22 S. Li, J. S. Lowengrub, J. Fontana and P. Palffy-Muhoray, *Phys. Rev. Lett.*, 2009, **102**, 174501.
- 23 P. H. A. Anjos and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2013, **88**, 053003.
- 24 L. W. Schwartz, *Phys. Fluids A*, 1989–1993, **1989**(1), 167–169.
- 25 L. Carrillo, F. X. Magdaleno, J. Casademunt and J. Ortín, *Phys. Rev. E: Stat. Phys., Plasmas, Fluids, Relat. Interdiscip. Top.*, 1996, **54**, 6260–6267.
- 26 E. Alvarez-Lacalle, J. Ortín and J. Casademunt, *Phys. Fluids*, 2004, **16**, 908–924.
- 27 J. A. Miranda and E. Alvarez-Lacalle, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2005, **72**, 026306.
- 28 R. Folch, E. Alvarez-Lacalle, J. Ortín and J. Casademunt, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2009, **80**, 056305.
- 29 C.-Y. Chen, Y.-S. Huang and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2011, **84**, 046302.

- 30 E. Álvarez-Lacalle, J. Ortín and J. Casademunt, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2006, **74**, 025302.
- 31 M. J. Shelley, F.-R. Tian and K. Wlodarski, *Nonlinearity*, 1997, **10**, 1471.
- 32 S. Roy and S. Tarafdar, *Phys. Rev. E: Stat. Phys., Plasmas, Fluids, Relat. Interdiscip. Top.*, 1996, **54**, 6495–6499.
- 33 M. Tirumkudulu, W. B. Russel and T. J. Huang, *Phys. Fluids*, 2003, **15**, 1588–1605.
- 34 D. Derks, A. Lindner, C. Creton and D. Bonn, *J. Appl. Phys.*, 2003, **93**, 1557–1566.
- 35 S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, J. Teisseire and P. Fabre, *Eur. Phys. J. E: Soft Matter Biol. Phys.*, 2004, **15**, 97–116.
- 36 M. B. Amar and D. Bonn, *Phys. D*, 2005, **209**, 1–16.
- 37 A. Lindner, D. Derks and M. J. Shelley, *Phys. Fluids*, 2005, **17**, 072107.
- 38 J. Nase, D. Derks and A. Lindner, *Phys. Fluids*, 2011, **23**, 123101.
- 39 E. O. Dias and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2013, **88**, 043002.
- 40 S. Sinha, T. Dutta and S. Tarafdar, *Eur. Phys. J. E: Soft Matter Biol. Phys.*, 2008, **25**, 267–275.
- 41 J. A. Miranda and M. Widom, *Int. J. Mod. Phys. B*, 1998, **12**, 931–949.
- 42 F. P. Bretherton, *J. Fluid Mech.*, 1961, **10**, 166–188.

APÊNDICE D:

**Adhesion force in fluids: Effects of fingering,
wetting, and viscous normal stresses**

Adhesion force in fluids: Effects of fingering, wetting, and viscous normal stresses

Pedro H. A. Anjos, Eduardo O. Dias, Laércio Dias, and José A. Miranda*

Departamento de Física, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, Pernambuco 50670-901 Brazil

Probe-tack measurements evaluate the adhesion strength of viscous fluids confined between parallel plates. This is done by recording the adhesion force that is required to lift the upper plate, while the lower plate is kept at rest. During the lifting process, it is known that the interface separating the confined fluids is deformed, causing the emergence of intricate interfacial fingering structures. Existing meticulous experiments and intensive numerical simulations indicate that fingering formation affects the lifting force, making it to decrease in intensity. In this work, we propose an analytical model that computes the lifting adhesion force by taking into account not only the effect of interfacial fingering, but also the action of wetting, and viscous normal stresses. The role played by the system's spatial confinement is also considered. We show that the incorporation of all these physical ingredients is necessary to provide a better agreement between theoretical predictions and experiments.

PACS numbers: 47.20.Ma, 47.15.gp, 68.35.Np, 68.15.+e

I. INTRODUCTION

The study of the adhesion properties of viscous fluids has been the object of a lot of research in recent years [1–16]. In all these investigations a key factor is the precise evaluation and characterization of the bond strength of spatially confined, liquid thin films. This can be achieved through the employment of an adhesion test, commonly known as the probe-tack test [17, 18]. In this test, a fluid sample is placed between two closely spaced parallel flat plates, and then the upper plate is lifted vertically at a prescribed rate. This happens while the lower plate is held fixed. During this fluid stretching process the applied lifting force is recorded. The result of such measurement is an adhesion force curve that quantifies the adhesive response of the liquid sample as a function of the upper plate displacement, or lifting time.

In addition to the assessment of the lifting adhesion force, another aspect of the problem has also been intensively investigated, both experimentally and theoretically [19–32]. It refers to the study of the appealing pattern formation phenomenon that takes place at the interface separating the lifted, more viscous fluid (e.g., oil), and the surrounding fluid (for instance, air) during the lifting procedure. As the plates separate the outer less viscous fluid enters the system, and the more viscous inner fluid moves inward. As a result, the fluid-fluid interface deforms, assuming complex, visually striking interfacial morphologies. The development of such interfacial instabilities is reminiscent of the classic viscous fingering instability [33], associated with the celebrated Saffman-Taylor problem [34]. The lifting setup examined in Refs. [19–32] is also known as the lifting Hele-Shaw cell problem.

One interesting aspect that connects the research performed in Refs [1–18] (evaluation of the adhesion force)

and that of Refs. [19–32] (study of the emerging pattern-forming structures) is the influence of fingering formation on the determination of the adhesion force itself. This important issue has been addressed via experiments and numerical simulations in Refs. [2, 3, 9, 14]. Initially, Derks *et al.* [2] have found a good agreement between their theoretical expression for the lifting force (that considered the interface as a stable retracting circle) and their experimental results. At that time, these authors argued that the detailed shape of the interface should have a very modest, or even no influence at all on the adhesive force. However, by dealing with highly viscous oils and larger lifting plate velocities, the experiments performed by Poivet *et al.* [3] have found that the fingering mechanism has indeed an influence on the lifting force. Afterwards, the influence of interfacial fingering on the adhesion force has been supported by the intensive numerical simulations carried out in [9] by Lindner and co-workers, and then confirmed by the meticulous experimental investigation recently conducted in Ref. [14] by Nase and collaborators. The main conclusion of these analyses was that the fingering formation process is in fact responsible for a decrease in the adhesion force.

Despite all the useful information and valuable advances obtained from the experimental and numerical studies performed in Refs. [2, 3, 9, 14] regarding the role of fingering instabilities on the magnitude of the adhesion force, an analytical model that properly describes such an effect is still lacking. The existing analytical prediction based on a stable retracting circle assumption, and on the sole action of viscous forces, is not in satisfactory agreement with experimental measurements [14]. In order to address this relevant matter, in this work we present an analytical model that explicitly incorporates the effects of fingering into the adhesion force expression. As a matter of fact, in addition to fingering effects, we show that a more accurate theoretical description should also include the contributions coming from wetting effects [35–37] and viscous normal stresses [38–40]. The action of the plate-plate geometry confinement is also taken into account.

* jme@df.ufpe.br

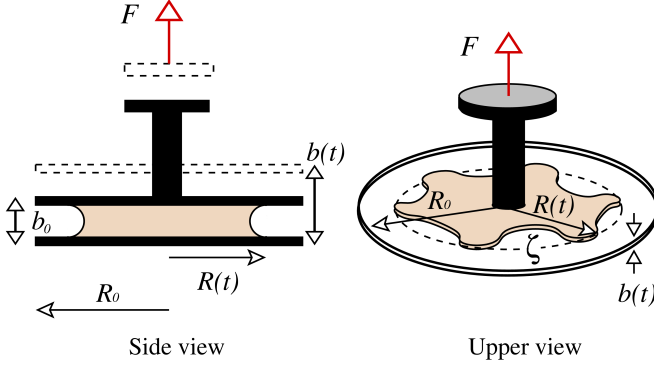


FIG. 1. (Color online) Representative sketch of the lifting flow arrangement in a (plate-plate) probe-tack apparatus.

As we will see, the comparison of our analytical results with careful laboratory measurements for the lifting force performed in Ref. [14] shows an improved agreement between theoretical predictions and experimental data.

II. DERIVATION OF THE LIFTING ADHESION FORCE

The physical system is illustrated in Fig. 1. We consider an incompressible fluid of high viscosity η confined between two narrowly spaced, parallel plates. The outer fluid has negligible viscosity. The upper plate of the probe-tack apparatus is subjected to a pulling force F so that the plate-plate separation evolves linearly in time according to $b = b(t) = b_0 + Vt$, where V is a constant lifting velocity, and b_0 is the initial plate-plate distance. The z -axis is defined in a direction perpendicular to the plates, and the lower plate is held fixed at $z = 0$. The radius of the fluid-fluid unperturbed interface at $t = 0$ is denoted by R_0 . The main goal in this section is to calculate the pulling force F as a function of displacement b , taking into account the viscous fingering instability, the effect of a thin wetting film trailing behind the stretched fluid, and viscous normal stress contributions.

We generalize the approach employed by Derks *et al.* [2], where it is assumed that the fluid-fluid interface remains circular during the entire lifting process. Our study is motivated by the fact that the experiments showing fingering instabilities in Refs. [2, 3, 9, 14] are not very well described by theoretical force-distance curves which consider a stable retracting circle. By considering the action of fingering, the perturbed two-fluid interface is defined as

$$\mathcal{R}(\theta, t) = R(t) + \zeta(\theta, t), \quad (1)$$

where

$$\zeta(\theta, t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \zeta_n(t) \exp(in\theta) \quad (2)$$

represents the net interfacial perturbation in polar coordinates (r, θ) with Fourier amplitudes $\zeta_n(t)$, and integer azimuthal wave numbers n . $R = R(t)$ is the time-dependent unperturbed radius, that by volume conservation satisfies the relation $R^2 b = R_0^2 b_0$.

For the confined plate-plate geometry, inertial effects can be neglected and the governing hydrodynamic equations are Darcy's law [14, 19, 20, 27]

$$\mathbf{v} = -\frac{b^2}{12\eta} \nabla p, \quad (3)$$

and a modified incompressibility condition [19]

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = -\frac{\dot{b}}{b}, \quad (4)$$

where the overdot denotes a total time derivative. Remember that in this work, as in most experiments, we take $\dot{b} = V$. In these equations $\mathbf{v} = \mathbf{v}(r, \theta)$ and $p = p(r, \theta)$ are, respectively, the gap-averaged velocity and pressure in the fluid.

From Eqs. (3) and (4) it can be readily verified that the pressure field obeys the Poisson equation

$$\nabla^2 p = \frac{12\eta\dot{b}}{b^3}, \quad (5)$$

whose solution is

$$p(r, \theta) = \frac{3\eta\dot{b}}{b^3} r^2 + \sum_{n \neq 0} p_n(t) \left(\frac{r}{R}\right)^{|n|} e^{in\theta}. \quad (6)$$

Note that previous analytical calculations for the adhesion force do not consider the role of fingering, so that the second term of Eq. (6) is neglected.

To take into account the role of the Saffman-Taylor instability, we have to find a relation between $p_n(t)$ and the perturbation amplitude $\zeta_n(t)$. To obtain such a relation we apply the kinematic boundary condition, which connects the velocity of the lifted fluid with the motion of the interface itself [33]

$$\frac{\partial \mathcal{R}}{\partial t} = \left[v_r - \frac{1}{r} \frac{\partial \mathcal{R}}{\partial \theta} v_\theta \right]_{r=\mathcal{R}}. \quad (7)$$

Here v_θ and v_r are the azimuthal and radial components of the fluid velocity, respectively. From this point on we employ a perturbative approach by keeping terms up to second order in ζ [32, 41]. By expanding Eq. (7), and then Fourier transform, we get

$$\begin{aligned} p_n(t) = & \frac{12\eta}{b^2} \left[-\frac{R}{n} \dot{\zeta}_n(t) - \frac{\dot{b}R}{2b|n|} \zeta_n(t) \right. \\ & + \sum_{n' \neq 0} \left(\text{sgn}(nn') - \frac{1}{|n|} \right) \dot{\zeta}_{n'} \zeta_{n-n'} \\ & \left. + \frac{\dot{b}}{2b} \sum_{n' \neq 0} \left(\text{sgn}(nn') - \frac{1}{|n|} \right) \zeta_{n'} \zeta_{n-n'} \right]. \end{aligned} \quad (8)$$

To include the contributions coming from surface tension, viscous normal stresses, and wetting effects, we consider a generalized Young-Laplace pressure boundary condition, which expresses the pressure across the two-fluid interface [15, 16, 35–38]

$$p|_{r=\mathcal{R}} = \left\{ \left[\frac{\pi}{4} \kappa - \frac{2}{b} \right] \sigma - \frac{2J\sigma}{b} \text{Ca}^\gamma + 2\eta \frac{\partial v_r}{\partial r} \right\} \bigg|_{r=\mathcal{R}}, \quad (9)$$

where, without loss of generality, we set the pressure of the outer fluid to zero. The usual contribution related to surface tension σ and the mean curvature of the fluid-fluid interface is expressed in the first term on the right hand side of Eq. (9), where κ denotes the interfacial curvature in the plane of the plates [33]. The factor $\pi/4$ is purely a capillary static effect, coming from the z -average of the mean interfacial curvature [35, 36]. Still in the first term, we have the contribution of the constant curvature $2/b$ associated with the interface profile in the direction perpendicular to the parallel plates.

In this work, we assume that the lifted viscous fluid wets the plates. The second term on the right hand side of Eq. (9) considers the wetting phenomena [35–37], where $\text{Ca} = \eta v_n / \sigma$ is the capillary number, $J = 3.8$, and $\gamma = 2/3$. Here v_n represents the normal component of the interface fluid velocity that can be written as $v_n = \hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{v}$, where $\hat{\mathbf{n}} = \nabla[r - \mathcal{R}(\theta, t)] / |\nabla[r - \mathcal{R}(\theta, t)]|$ denotes the unit normal vector at the interface. Finally, the third term on the right hand side of (9) takes into account viscous normal stresses [38–40]. Notice that v_r and v_n can be calculated by Eq. (6), and by Darcy’s law (3).

The force required to lift the the probe-tack apparatus is calculated by integrating the pressure difference above and below the upper plate over the region occupied by the fluid. Therefore, the adhesion force is given by [9]

$$\begin{aligned} F(t) &= - \int_{\Omega(t)} p dA \\ &= \frac{1}{2} \int_{\Omega(t)} \nabla p \cdot \mathbf{r} dA - \frac{1}{2} \int_{\Gamma(t)} p \hat{\mathbf{n}} \cdot \mathcal{R} \hat{\mathbf{r}} dl, \end{aligned} \quad (10)$$

where $\mathbf{r}$ is a position vector in the plane of the plates ($x - y$ plane). Note that in Eq. (10), we represent the force exerted by the lifting machine on the upper plate by two contributions: one comes from the bubble cross-section in $x - y$ plane $\Omega(t)$, and another one from its time-dependent boundary $\Gamma(t)$.

To obtain the final expression of the pulling force we have to substitute the pressure field (6), and the fluid pressure at the interface (9) into the first and second integrals in Eq. (10), respectively. So, keeping terms up to second order in ζ , we have

$$\begin{aligned} F(t) &= f(t) + f_s(t) + J f_w(t) \\ &+ \sum_{n \neq 0} \left[g(t) + g_s(t) + J g_w(t) \right] |\zeta_n(t)|^2, \end{aligned} \quad (11)$$

where

$$f(t) = \frac{3\pi\eta\dot{b}}{2b^3} R^4, \quad (12)$$

$$f_s(t) = \frac{\pi\eta\dot{b}}{b} R^2, \quad (13)$$

$$f_w(t) = \frac{2\pi\sigma}{b} R^2 \left(\frac{\eta\dot{b}}{2\sigma b} R \right)^\gamma, \quad (14)$$

$$g(t) = -\frac{12\pi\eta}{b^2} \lambda(n) R^2, \quad (15)$$

$$g_s(t) = -2\pi\eta|n|(n-1) \left[\lambda(n) + \frac{\dot{b}}{2b} \right], \quad (16)$$

and

$$g_w(t) = \frac{\gamma f_w(t)}{2R^2} \left\{ 1 - n^2 + \lambda(n) \frac{2b}{\dot{b}} \left[(\gamma - 1) \lambda(n) \frac{2b}{\dot{b}} - 2 \right] \right\}. \quad (17)$$

In Eqs. (11)-(17) the subscripts s and w identify the terms related to viscous normal stresses and wetting effects, respectively.

In addition, in Eqs. (15)-(17) $\lambda(n)$ denotes the time-dependent, linear growth rate of the amplitudes $\zeta_n(t)$, that is given by [31, 32]

$$\lambda(n) = \frac{1}{s(n) + w(n)} \left\{ \frac{\dot{b}}{2b} [|n| - s(n)] - \frac{\pi\sigma b^2}{48\eta R^3} |n|(n^2 - 1) \right\}, \quad (18)$$

where

$$s(n) = 1 + \frac{b^2}{6R^2} |n|(|n| - 1) \quad (19)$$

is associated to the effects of the viscous normal stresses, and

$$w(n) = \gamma |n| J \frac{b}{6R} \left(\frac{2b\sigma}{\dot{b}\eta R} \right)^{1-\gamma} \quad (20)$$

is related to the wetting film contribution. It is worthwhile to note that, consistently experimental findings, we have verified that for the strongly confined very viscous fluids used here and in Refs. [2, 3, 9, 14], the contribution of capillary effects [terms between square brackets in Eq. (9)] to the adhesion force (11) is very small and can be neglected. However, capillary effects are of relevance for the calculation of the interfacial perturbation amplitudes $\zeta_n(t)$, and for the terms connected to them in Eq. (11) [$g(t)$, $g_s(t)$, and $g_w(t)$].

The adhesion force expression (11) is our central analytical result. In such equation, $f(t)$ corresponds to the traditional theoretical model (hereafter referred to as the “simplest model”) of the adhesion force, that only includes the contributions of viscous effects [2, 3, 9, 14]. All the remaining terms of Eq. (11) are associated with the

additional physical contributions we consider in our current theoretical model. Observe from Eq. (11) that the functions $g(t)$, $g_s(t)$, and $g_w(t)$ couple with the fingering term $|\zeta_n(t)|^2$. Finally, note that to obtain the complete dependence of the force on time, we have to know the evolution of the perturbations amplitudes $\zeta_n(t)$. The dynamics of these disturbances has been recently studied in Refs. [31, 32], where Darcy's law (3), incompressibility equation (4), and boundary conditions (7) and (9) are used to obtain a differential equation for the evolution of the perturbation amplitudes $\zeta_n(t) = \lambda(n)\zeta_n(t) + O(\zeta^2)$, yielding

$$\zeta_n(t) = \zeta_n(0) \exp \left[\int_0^t \lambda(n) dt' \right]. \quad (21)$$

III. DISCUSSION AND COMPARISON WITH EXPERIMENTS

In this section we contrast the experimental data obtained in the paper by Nase *et al.* [14] for the lifting adhesion force with the theoretical predictions of the analytical model we have developed in this work (11). These set of data are also compared to the simplest model of the adhesion force [Eq. (12)] [2, 3, 9, 14], that only includes the contributions of viscous effects, and neglects fingering, viscous normal stresses and wetting effects. To facilitate the comparison of our model with the experimental findings presented in [14], we define the dimensionless quantities

$$t' = \frac{V}{b_0} t, \quad \tau_0 = \frac{\sigma b_0^3}{12\eta V R_0^3}, \quad \text{and} \quad q = \frac{R_0}{b_0}, \quad (22)$$

where t' is a reduced time, τ_0 is a surface tension parameter, and q is the initial aspect ratio (measure of the system's confinement). These are the parameters utilized in the experimental investigation carried out in [14].

We begin our discussion by examining the representative Fig. 2 that depicts how the adhesion force F (measured in Newtons) varies as a function of the dimensionless reduced time t' . We stress that this is exactly the way the experimental data has been presented in Nase *et al.* paper [14] (see their Fig. 14). Throughout this section, the characteristic physical parameters we used are precisely those utilized in Ref. [14], namely: $\eta = 100$ Pa s, $\sigma = 0.02$ N/m, and $R_0 = 3.0$ mm. The same is true for values we consider for the aspect ratio q . In Fig. 2 we take $q = 54.5$, and surface tension parameter $\tau_0 = 3.0 \times 10^{-5}$. All initial perturbation amplitudes $\zeta_n(0)$ we used are of the order of $10^{-7} - 10^{-6}$ m. In our calculations the participating wave numbers are $0 \leq n \leq n_c$, where n_c is the critical mode at $t = 0$. This critical mode is obtained by setting $\lambda(n = n_c) = 0$ [see Eq. (18)], establishing the width of the band of unstable modes.

Figure 2 presents the experimental data points taken from Ref. [14] (represented by the symbol $\bullet$), and four theoretical curves. A typical experimental curve as the

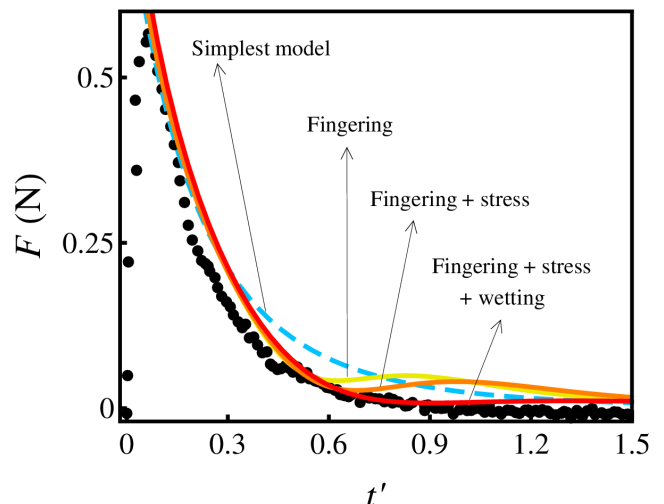


FIG. 2. (Color online) Lifting adhesion force F plotted as a function of the reduced time t' for aspect ratio $q = 54.5$, and surface tension parameter $\tau_0 = 3.0 \times 10^{-5}$. Here at $t = 0$ $n_c = 145$. The dashed curve represents the results obtained by the simplest model [2, 3, 9, 14]. The experimental points ($\bullet$) are from Nase *et al.* paper Ref. [14]. The three solid curves all refer to the situation described by the analytical model we develop in this work, gradually including the various physical effects we took under consideration: first, only fingering, then fingering plus viscous normal stress, and finally fingering plus stress, plus wetting.

one represented by the data points in Fig. 2 starts with a sharp increase of the adhesion force once the probe is pulled apart. The force quickly reaches to its maximum, and then drops asymptotically to zero as the plate-plate separation is increased. It has been shown [1–4, 8] that the formation of a sharp peak is due to the compliance of the lifting apparatus. Here, as in Refs. [2, 3, 9, 14] without loss of generality, we consider an infinitely rigid machine, where the force starts at a finite value, and eventually tends to zero as the plate separation increases (as represented by the four theoretical curves in Fig. 2).

Regarding the theoretical curves illustrated in Fig. 2, the dashed curve is related to the results obtained by the simplest model [2, 3, 9, 14], while the three solid curves are related to the results acquired from our analytical model for the adhesion force, progressively including the relevant physical ingredients (fingering, normal stresses, and wetting). The first solid curve just adds the contribution of fingering, the second considers the action of fingering and viscous normal stress, and finally the third one takes into account the joined effects of fingering, viscous normal stress, and wetting. This is done to illustrate the contribution of each physical ingredient in shaping the ultimate form of the adhesion force curve.

By examining Fig. 2 we notice that there is a clear discrepancy between the dashed curve (representing the simplest model) and the experimental data. In order to get a better fit, we start adding the new ingredients

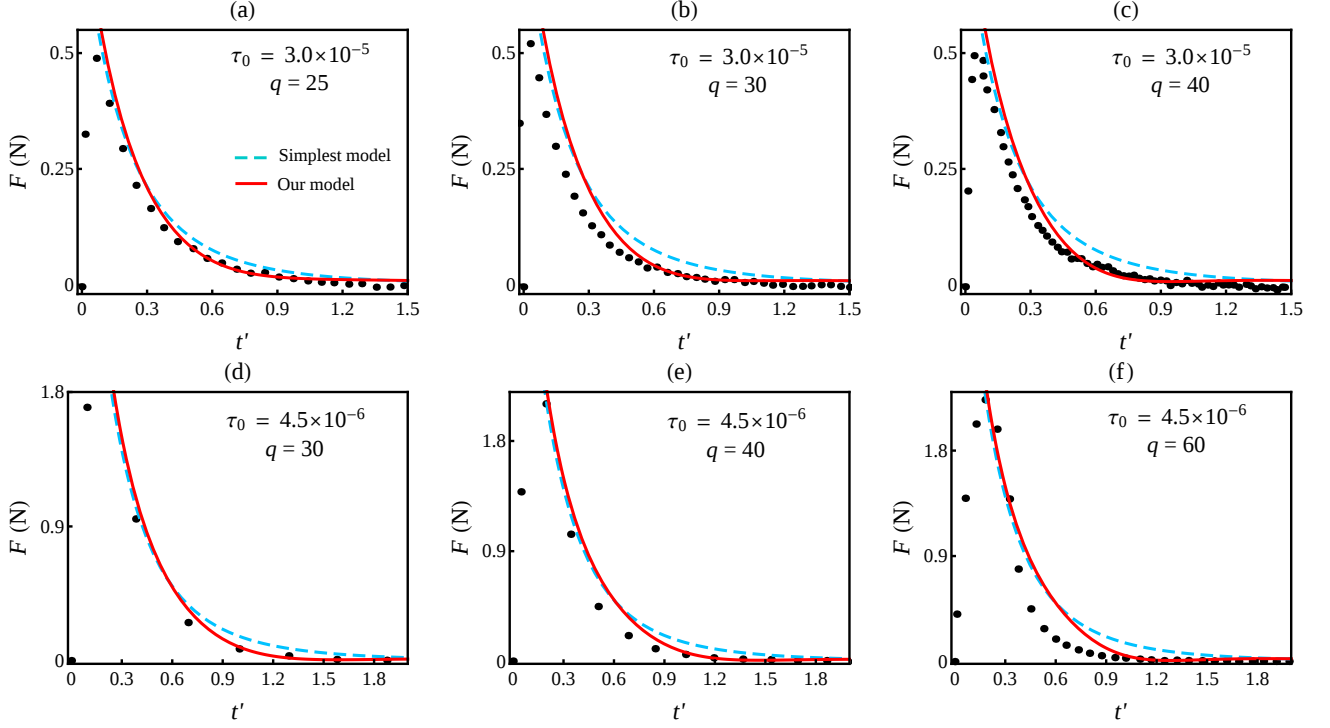


FIG. 3. (Color online) Adhesion force F as a function of the reduced time t' , for several values of the aspect ratio q , and two values of the surface tension parameter τ_0 : 3.0×10^{-5} [Figs. 3(a)-3(c)], and 4.5×10^{-6} [Figs. 3(d)-3(f)]. In Figs. 3(a)-3(c) $n_c = 145$ at $t = 0$, while in Figs. 3(d)-3(f) $n_c = 360$ at $t = 0$. The theoretical curves refer to the adhesion force calculated from the simplest model used in Refs. [2, 3, 9, 14] (dashed curves), and from our current model that takes into consideration the combined influence of fingering, wetting, and viscous normal stresses (solid curves). The experimental points ($\bullet$) are from Fig. 14 in Nase *et al.* paper - Ref. [14].

considered by our model. First, we add just the effect coming from fingering to the simplest model: as one can verify from Fig. 2 the addition of fingering approaches the theoretical curve to the experimental data for intermediate values of t' ($0.4 < t' < 0.6$). However, the solid curve associated to the fingering contribution presents a bump for larger values of t' ($t' > 0.6$). This bump is not in agreement with the experimental points. This indicates that by perturbatively adding just the action of fingering, one does not get a good fitting with the experimental data, at least for larger reduced times. In a recent work [31], two of us have shown that the predictions for the number of fingers in the lifting Hele-Shaw cell improve significantly when one takes into account the role played by viscous normal stresses, and by wetting film effects. These stresses are related to normal velocity gradients at the fluid-fluid interface [38–40]. On the other hand, it is known the thin layer of oil (inner fluid) left on the plates [35–37] could explain the fact that the adhesion force is smaller than predicted from the simplest model theory [14].

Motivated by these findings [14, 31, 35–40], first we decided to consider the combined effect of fingering and stress (see Fig. 2). As one we see, the normal viscous stresses tend to lower the intensity of the nonphysical

bump that arises at larger t' values. However, a smaller bump still persists. At this point, a logical alternative would be to consider the effect of the wetting film left behind during the lifting process. This is represented by the solid curve in Fig. 2 that implements our model, now taking into account the role of fingering, viscous normal effects, and wetting. By inspecting Fig. 2 it is evident that the inclusion of all these ingredients make the unphysical bump to disappear, leading to a much better fit between experiment data and our theoretical model. We emphasize that the general findings and conclusions presented above for the illustrative case depicted in Fig. 2 have also been observed in all other cases considered in this work, that assumed different values of τ_0 and q . In order to substantiate the effectiveness and greater accuracy of our analytical model for the lifting adhesion force (as illustrated by Fig. 2), below we present a series of results for other values of the aspect ratio q , and two characteristic values of the surface tension parameter τ_0 .

We proceed our discussion by analyzing Fig. 3 that plots the adhesion force F in terms of the reduced time t' . The dashed curves refer to the simplest model utilized in Refs. [2, 3, 9, 14], while the solid curves are obtained from our model. Once again, the experimental data have been taken from Nase *et al.* article [14] (more precisely

from their Fig. 14), and are represented by the solid black circles ($\bullet$). Figures 3(a)-3(c) consider an effective surface tension parameter $\tau_0 = 3.0 \times 10^{-5}$, and increasingly larger values for the aspect ratio: (a) $q = 25$, (b) $q = 30$, and (c) $q = 40$. These are precisely the values of τ_0 and q used in Fig. 14(a) of Ref. [14]. On the other hand, Figs. 3(d)-3(f) take a smaller value for τ_0 ($\tau_0 = 4.5 \times 10^{-6}$), and aspect ratio equals to: (d) $q = 30$, (e) $q = 40$, and (f) $q = 60$. Now, the values of τ_0 and q utilized in Figs. 3(d)-3(f) are exactly the ones used in Fig. 14(b) of Ref. [14].

First, we inspect Figs. 3(a)-3(c). As verified by the experiments performed in [14], larger values of τ_0 are associated to a less destabilized interface, resulting in patterns presenting a smaller number of fingers. So, in principle, the effects of fingering should not be dramatic in Figs. 3(a)-3(c). Moreover, as also experimentally observed in [14], larger values of q (larger confinement) lead to greater interface destabilization, and consequently to the production of more fingers. Therefore, for a fixed τ_0 the role of fingering on adhesion should become more relevant as q assumes larger values.

By examining Figs. 3(a)-3(c) we see that the experimental results lie below the dashed curve that is calculated from the simplest model. On the other hand, it is also evident that the solid curve obtained from our model presents regions where one finds an improved fit with the experimental data, notably where t' is not very small. This is indicative of the fact that our analytical modeling for the adhesion force, where the contributions of fingering, wetting and viscous normal stresses are of relevance, provides a better agreement with existing experimental measurements.

At early reduced times, note that both curves (dashed and solid) overlap, and are situated considerably above the first few experimental points. Nevertheless, this is not really surprising. As we mentioned earlier, it is known that at the initial time regime the peak behavior shown by the experimental data is attributed to the compliance (or, stretching) of the probe-tack apparatus [1-3, 9, 14]. The effect of the apparatus' compliance is not considered in either theoretical models (simplest or ours), so this can at least partially justify the mismatch between both theories and the experimental data for small t' . It is worth noting that as q is increased the dashed curve tends to get away from the data points, while the solid curve stick close to them, supporting the relevance of the various effects included in our model to better describe the experiments.

At this point, we turn to the analysis of Figs. 3(d)-3(f). Recall that now, we are considering growing aspect ratios q under a lower value of τ_0 as compared to the one utilized in Figs. 3(a)-3(c). Thus, a greater number, of longer fingers should arise at the fluid-fluid interface [14]. In these circumstances, one should expect that the effect of fingering on the adhesion force should be even more important. In fact, this is what one verifies by examining Figs. 3(d)-3(f): the distance found between the experimental data points and the computed forces (for both

<i>p</i> -values						
Fig. 3	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)	(f)
Exp., Ours	0.5713	0.9180	0.9821	0.9999	0.9971	0.9205
Exp., Simplest	0.5713	0.0887	0.1340	0.9627	0.4792	0.1549

TABLE I. *p*-values associated with the data contained in Figs. 3(a)-Fig. 3(f). Significance level of the Kolmogorov-Smirnov test: $\alpha = 0.05$. The best model is the one associated with the largest *p*-value.

models, simplest and ours) tend to increase as q is increased. Nonetheless, as in Figs. 3(a)-3(c) we see that the the solid curves still provide a better match with the data. This is particularly true when the aspect ratio $q = 30$, and 40. However, the agreement is not so good for $q = 60$. This can be explained by the fact that our analytical model is based on a perturbative approach, which is valid only for small interfacial perturbation amplitudes. Higher values of q quickly produce fingers with sizable amplitudes, a situation that is beyond the validity of our analytical model. Despite of this limitation, our theoretical results still offer a better agreement with the experiments.

We close this section by providing a more quantitative basis to the improved agreement of our model with the experimental data, as contrasted with the simplest model employed in Ref. [2, 3, 9, 14]. In order to do that we utilized the Kolmogorov-Smirnov test [42, 43] using the data plotted in Fig. 3. Since both our model and the simplest model do not consider the compliance of the probe-tack apparatus, we have excluded all data points appearing prior to the force peak. This statistical test is very common in the fields of science and engineering, and is quite useful when one wishes to compare two sets of measurements. For a comprehensive treatment about this test, see, e.g., Ref. [44]; for computational details, see Refs. [44, 45].

Consider two theoretical models for which the hypothesis “the theoretical model fits the experimental data” cannot be rejected. For the two cases, the so-called *p*-value obtained by a goodness of fit test (as the Kolmogorof-Smirnov test) is greater than a previous to test chosen significance level α (an usual choice is $\alpha = 0.05$ to have a test with confidence level equals to 95%). In this context, we should select as the best model, that model associated with the larger *p*-value. The results obtained for the calculated *p*-values (by applying the Kolmogorov-Smirnov test) to verify the goodness of fit with the experimental data from Ref. [14] [as plotted in Fig. 3(a)- Fig. 3(f)] are presented in table I. First, we show the *p*-values applying the test for the experimental data [14], and the corresponding data obtained from our model (Exp., Ours). In the following row of the table, we display the *p*-values associated with the test used by considering the experimental data, and the corresponding data extracted from the simplest model [2, 3, 9, 14] (Exp., Simplest). Within the scope of the Kolmogorov-

Smirnov test the results displayed in table I indicate that our analytical model does provide a better fit with experimental data.

IV. CONCLUDING REMARKS

Sophisticated numerical simulations and careful experimental measurements indicate that the lifting adhesion force obtained for probe-tack tests with fluids is influenced by the fingering instabilities that develop at the contracting two-fluid interface. Traditional analytical modeling of the situation (the simplest model) does not take into consideration the effect of the fingering patterns on the adhesion force strength. Consequently, there exists a mismatch between existing analytical predictions for adhesion force and actual experimental data.

In this work, we proposed an enhanced analytical description for the adhesion force that adds to the simplest model not only the effects of fingering, but also the influence of viscous normal stresses, and the action of the

wetting film left behind on the plates of the lifting apparatus. By comparing our analytical results with existing experimental data, we showed that the successive addition of these three contributions (fingering, normal stresses and wetting) leads to increasingly improved theoretical predictions for the adhesion force. Such comparisons have been performed for two values of the surface tension parameter, and several values of the plate-plate confinement (aspect ratio q of the system). Employment of the Kolmogorov-Smirnov statistical test supports the idea that our analytical model does work better than the simplest model in describing the actual behavior of the system as expressed by experiments.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank CNPq and FACEPE (through PRONEM project No. APQ-1415-1.05/10) for financial support. We are grateful to Julia Nase for kindly supplying the experimental adhesion force data of Ref. [14].

-
- [1] B. A. Francis and R. G. Horn, *J. Appl. Phys.* **89**, 4167 (2001).
 - [2] D. Derks, A. Lindner, C. Creton, and D. Bonn, *J. Appl. Phys.* **93**, 1557 (2003).
 - [3] S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, and P. Fabre, *Europhys. Lett.* **62**, 244 (2003).
 - [4] M. Tirumkudulu, W. B. Russel, and T. J. Huang, *Phys. Fluids* **15**, 1588 (2003).
 - [5] R. D. Welsh, M.Sc. thesis, Massachusetts Institute of Technology, 2001.
 - [6] J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **69**, 016311 (2004).
 - [7] J. A. Miranda, R. M. Oliveira, and D. P. Jackson, *Phys. Rev. E* **70**, 036311 (2004).
 - [8] S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, J. Teisseire, and P. Fabre, *Eur. Phys. J. E* **15**, 97 (2004).
 - [9] A. Lindner, D. Derks, and M. J. Shelley, *Phys. Fluids* **17**, 072107 (2005).
 - [10] Y.O.M. Abdelhay, M. Chaouche, and H. Van Damme, *Appl. Clay Sci.* **42**, 163 (2008).
 - [11] S. A. Lira and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **80**, 046313 (2009).
 - [12] Q. Barral, G. Ovarlez, X. Chateau, J. Boujlel, B. Rabideau, and P. Coussot, *Soft Matter* **6**, 1343 (2010).
 - [13] R. H. Ewoldt, P. Tourkine, G. H. McKinley, and A. E. Hosoi, *Phys. Fluids* **23**, 073104 (2011).
 - [14] J. Nase, D. Derks, and A. Lindner, *Phys. Fluids* **23**, 123101 (2011).
 - [15] E. O. Dias and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **85**, 016312 (2012).
 - [16] E. O. Dias and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **86**, 046322 (2012).
 - [17] A. Zosel, *Colloid Polym. Sci.* **263**, 541 (1985).
 - [18] H. Lakrout, P. Sergot, and C. Creton, *J. Adhes.* **69**, 307 (1999).
 - [19] M. J. Shelley, F.-R. Tian, and K. Wlodarski, *Nonlinearity* **10**, 1471 (1997).
 - [20] J. Bohr, S. Brunak, and T. Nørretranders, *Europhys. Lett.* **25**, 245 (1994).
 - [21] S. Roy and S. Tarafdar, *Phys. Rev. E* **54**, 6495 (1996).
 - [22] S. K. Thamida, P. V. Takhistov, and H.-C. Chang, *Phys. Fluids* **13**, 2190 (2001).
 - [23] S. Sinha, S. K. Kabiraj, T. Dutta, and S. Tarafdar, *Eur. Phys. J. B* **36**, 297 (2003).
 - [24] S. K. Kabiraj and S. Tarafdar, *Physica A* **328**, 305 (2003).
 - [25] J. A. Miranda and R. M. Oliveira, *Phys. Rev. E* **69**, 066312 (2004).
 - [26] C.-Y. Chen, C.-H. Chen, and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **71**, 056304 (2005).
 - [27] M. Ben Amar and D. Bonn, *Physica D* **209**, 1 (2005).
 - [28] J. Nase, A. Lindner, and C. Creton, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 074503 (2008).
 - [29] S. Sinha, T. Dutta, and S. Tarafdar, *Eur. Phys. J. E* **25**, 267 (2008).
 - [30] E. O. Dias and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **81**, 016312 (2010).
 - [31] E. O. Dias and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **88**, 043002 (2013).
 - [32] P. H. A. Anjos and J. A. Miranda, *Soft Matter* **10**, 7459 (2014).
 - [33] G. M. Homsy, *Annu. Rev. Fluid Mech.* **19**, 271 (1987); K. V. McCloud and J. V. Maher, *Phys. Rep.* **260**, 139 (1995).
 - [34] P. G. Saffman and G. I. Taylor, *Proc. R. Soc. London Ser. A* **245**, 312 (1958).
 - [35] C.-W. Park and G. M. Homsy, *J. Fluid Mech.* **139**, 291 (1984).
 - [36] L. Schwartz, *Phys. Fluids* **29**, 3086 (1986).
 - [37] P. H. A. Anjos and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **88**, 053003 (2013).
 - [38] E. Alvarez-Lacalle, J. Ortín, and J. Casademunt, *Phys. Fluids* **16**, 908 (2004).

- [39] H. Gad  lha and J. A. Miranda, Phys. Rev. E **79**, 066312 (2009).
- [40] H. Kim, T. Funada, D. D. Joseph, and G. M. Homsy, Phys. Fluids **21**, 074106 (2009).
- [41] J. A. Miranda and M. Widom, Physica D **120**, 315 (1998).
- [42] A. N. Kolmogorov, G. Ist. Ital. Att. **4**, 83 (1933).
- [43] N. Smirnov, Ann. Math. Stat. **19**, 279 (1948).
- [44] M.G. Kendall and A. Stewart, *The Advanced Theory of Statistics*, 3rd ed. (Hafner, New York, 1973), Vol. 2.
- [45] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, and W. T. Vetterling, *Numerical Recipes: The Art of Scientific Computing* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1986).