



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

DISSERTAÇÃO DE MESTRADO

PROPRIEDADES ADESIVAS DE FLUIDOS MAGNÉTICOS

por

Sérgio Henrique Albuquerque Lira

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco como parte dos requisitos para obtenção do título de Mestre em Física.

Banca Examinadora:

Prof. José Américo de Miranda Neto (Orientador-UFPE)

Prof. Frederico Borges de Brito (DF - UFPE)

Prof. Alexandre da Silva Rosas (DF-UFPB)

Recife - PE, Brasil
Fevereiro - 2010

Catálogo na fonte
Bibliotecária Joana D'Arc L. Salvador, CRB 4-572

Lira, Sérgio Henrique Albuquerque.
Propriedades adesivas de fluidos magnéticos /
Sérgio Henrique Albuquerque Lira. - Recife: O Autor,
2010.
xiii, 72 f.: fig.

Orientador: José Américo de Miranda Neto.
Dissertação (Mestrado) - Universidade Federal de
Pernambuco. CCEN. Física, 2010.

Inclui bibliografia e apêndice.

1. Mecânica dos fluidos. 2. Adesão. 3. Reologia
4. Fluidos magnéticos. I. Miranda Neto, José Américo de
(orientador). II. Título.



Universidade Federal de Pernambuco
Departamento de Física – CCEN
Programa de Pós-Graduação em Física
Cidade Universitária - 50670-901 Recife PE Brasil
Fone (++) 55 81) 2126-8449/2126-8450 - Fax (++) 55 81) 3271-0359
<http://www.df.ufpe.br/pg> e-mail: posgrad@df.ufpe.br

Parecer da Banca Examinadora de Defesa de Dissertação de Mestrado

Sérgio Henrique Albuquerque Lira

PROPRIEDADES ADESIVAS DE FLUIDOS MAGNÉTICOS

A Banca Examinadora composta pelos Professores José Américo de Miranda Neto (Presidente e Orientador), Frederico Borges de Brito, ambos do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco e Alexandre da Silva Rosas, do Departamento de Física da Universidade Federal da Paraíba, consideram o candidato:

☒ Aprovado

☐ Reprovado

☐ Em exigência

Secretaria do Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física do Centro de Ciências Exatas e da Natureza da Universidade Federal de Pernambuco em vinte e seis de fevereiro de dois mil e dez.



Prof. José Américo de Miranda Neto
Presidente e Orientador



Prof. Frederico Borges de Brito



Prof. Alexandre da Silva Rosas

Aos meus amigos e familiares

Agradecimentos

Agradeço a todos os que tornaram possível, direta ou indiretamente, meus estudos e trabalho.

Ao meu orientador José Américo de Miranda Neto pela grande compreensão e confiança para comigo, e por me instruir a fazer ciência com prazer e humildade.

À minha família pelo suporte incondicional: físico, social e emocional. Em especial, ao meu avô Domingos Chagas Neto, cuja passagem dessa vida coincidiu com o término desse trabalho.

À minha companheira e amante Fernanda, cujo amor e carinho me fizeram superar a distância da minha terra natal e me deram forças para continuar no duro caminho da ciência.

Aos meus verdadeiros amigos, pelo apoio gratuito e nem sempre correspondido.

Aos meus professores e mestres, que me propiciaram uma boa formação e me incitaram a curiosidade.

Ao suporte financeiro do CNPq e do meu país.

Resumo

Neste trabalho nós exploramos analítica e computacionalmente o desempenho adesivo de um fluido magnético não-newtoniano quando submetido a um teste do tipo *probe-tack* na presença de um campo magnético externo. Duas situações distintas são levadas em consideração para a amostra de fluido confinado: a de um ferrofluido que apresenta formação de cadeias de partículas magnéticas e a de um fluido magneto-reológico (MR) que apresenta um *yield stress* dependente do campo magnético. No caso envolvendo o ferrofluido, modelamos uma suspensão polidispersa de partículas magnéticas através de um tensor das tensões generalizado, que assume que o caráter não-newtoniano do fluido advém da formação de pequenas cadeias de partículas ao longo da direção do campo magnético local. A partir desse tensor calculamos analiticamente a viscosidade efetiva do material quando este é submetido a um campo magnético radial. Em seguida utilizamos a viscosidade não-newtoniana encontrada numa lei de Darcy generalizada e obtemos uma expressão para a força de adesão do fluido. Observamos que a formação de cadeias de partículas a partir da aplicação do campo externo produz um impacto considerável na força adesiva, sendo capaz de regulá-la convenientemente. Para a situação do fluido magneto-reológico, uma equação análoga a lei de Darcy é derivada ao considerarmos que os efeitos de *yield stress* prevalecem sobre os efeitos viscosos. Com base em experimentos já estabelecidos, assumimos que o *yield stress* em questão possui uma dependência quadrática com o campo magnético local. A partir daí, derivamos a expressão analítica para a força de adesão do fluido para duas configurações de campo distintas: perpendicular uniforme, e radial não-uniforme. Em ambos os casos verificamos que a força adesiva é dramaticamente aumentada como resultado da dependência do *yield stress* com o campo magnético. Esses resultados abrem a possibilidade de um monitoramento de respostas reológicas complexas de tais fluidos magnéticos através do auxílio de um campo magnético aplicado, permitindo um maior acesso a suas propriedades adesivas.

Palavras-chave: Adesão, reologia, ferrofluido, fluido magneto-reológico, comportamento não-newtoniano.

Abstract

In this work, we employ an analytical and numerical approach to investigate the adhesive performance of a nonNewtonian magnetic fluid when submitted to a *probe-tack* test at the presence of an applied magnetic field. Two distinct situations are considered for the confined fluid sample: a ferrofluid that presents chain-formation of magnetic particles, and a magnetorheological (MR) fluid that presents a magnetic field-dependent *yield stress*.

At the case of the ferrofluid, we model a polydisperse suspension of magnetic particles via a generalized stress tensor, and we assume that the nonNewtonian behavior of the fluid arises from the formation of short particle chains at the direction of the local magnetic field. By using this tensor we analytically calculate the effective viscosity of the material when it is submitted to a radial magnetic field. Then, we input this nonNewtonian viscosity at a generalized Darcy's law and obtain an expression for the adhesion force of the fluid. We observe that the chain-formation, induced by the applied magnetic field, produces a significant impact at the magnitude of the adhesion force, and that one is capable of conveniently tune it.

At the MR fluid situation, an equation analogous to Darcy's law is derived by considering that *yield stress* effects are prevalent over viscous effects. Based on well established experimental results on MR fluids, we assume that its *yield stress* presents a quadratic dependence with the local magnetic field. From this point, we derive an analytical expression for the adhesion force exerted by the fluid for two different field configurations: a uniform perpendicular field configuration, and a non-uniform radial field. At both cases we verify that the adhesive force is dramatically increased as a result of the *yield stress* field-dependence.

The achieved results open up the possibility of monitoring the complex rheological responses of such magnetic fluids by using an applied magnetic field, and this allows a higher access of its adhesive properties.

Keywords: Adhesion, rheology, ferrofluid, magnetorheological fluid, nonNewtonian behavior.

Sumário

1	Introdução	1
1.1	Adesão com fluidos viscosos não-magnéticos	2
1.1.1	Fluidos newtonianos	3
1.1.2	Fluidos não-newtonianos	6
1.2	Fluidos magnéticos	8
1.3	Roteiro da dissertação	11
2	Formação de cadeias magnéticas em ferrofluidos	13
2.1	Literatura vigente: estudos teóricos e experimentais	13
2.2	Fenômenos de adesão com ferrofluidos que apresentam cadeias	15
2.3	Efeitos do campo magnético na viscosidade	18
2.4	Força de Adesão	22
2.4.1	Limite de cisalhamento nulo	26
2.4.2	Situação de cisalhamento finito	29
3	<i>Yield stress</i> em fluidos magneto-reológicos	32
3.1	Propriedades básicas de fluidos magneto-reológicos	32
3.2	Adesão em fluidos magneto-reológicos: formulação do problema	34
3.3	Cálculo da força de adesão	37
3.3.1	Campo magnético perpendicular	39
3.3.2	Campo magnético radial	44
4	Conclusão	48
A	Adhesion properties of chain-forming ferrofluids	51

Phys. Rev. E 79 , 046303 (2009)	51
B Field-controlled adhesion in confined magnetorheological fluids	60
Phys. Rev. E 80 , 046313 (2009)	60
Referências Bibliográficas	69

Lista de Figuras

- 1.1 Imagem de descolamento de um adesivo mole convencional sensível à pressão, obtida através de microscopia eletrônica de varredura [1]. A propriedade de grande adesão do material se origina na formação das complexas estruturas fibrilares mostradas na figura. 1
- 1.2 Cisalhamento puro de um filme de fluido newtoniano. A lâmina superior de fluido desloca-se a uma velocidade constante não-nula, enquanto a velocidade é nula no plano em contato com a superfície da base. Figura adaptada da Ref. [14]. 3
- 1.3 Curvas de força-distância num gráfico log-log para diferentes valores de espaçamento inicial, obtidas na Ref. [5] para um fluido newtoniano. Os pontos correspondem às medidas experimentais, enquanto a linha tracejada corresponde à previsão dada pela Eq. (1.2). As curvas contínuas foram obtidas teoricamente levando em conta a elasticidade do aparato. 5
- 1.4 Esboço qualitativo de curvas da viscosidade efetiva em função da taxa de cisalhamento nos casos de um fluido newtoniano (esquerda), não-newtoniano com comportamento *shear-thinning* (centro) e não-newtoniano com comportamento *shear-thickening* (direita). 6
- 1.5 Curvas de força-distância num gráfico log-log para diferentes valores de espaçamento inicial, obtidas na Ref. [5] para um fluido não-newtoniano. Os pontos correspondem às medidas experimentais, enquanto a linha tracejada corresponde à previsão dada pela Eq. (1.5). As curvas pontilhadas e contínuas foram obtidas teoricamente levando em conta a elasticidade do aparato. 7
- 1.6 Alinhamento de um fluido magnético às linhas de campo magnético de um ímã [17]. 8

- 1.7 Ilustração de ferrofluido (à esquerda) [21] e fluido MR (à direita) [22], ambos sob influência de um campo magnético não-uniforme. 10
- 2.1 Esquema ilustrativo de um ferrofluido que apresenta formação de cadeias de partículas [29]. O campo magnético é mantido constante na direção axial enquanto a rotação do fluido é aumentada (de (a) para (d)). As cadeias se alinham na direção do campo magnético e sofrem torque devido ao fluxo de velocidades do ferrofluido. Quando a taxa de cisalhamento é muito alta as cadeias são destruídas. 13
- 2.2 À esquerda está um esquema de como o desalinhamento das cadeias devido ao fluxo distorce o padrão de espalhamento dos nêutrons. À direita está o resultado experimental obtido na Ref. [28] para um padrão de espalhamento que acusa a existência de cadeias numa amostra de ferrofluido. 15
- 2.3 Representação diagramática do aparato de *probe-tack*, onde um ferrofluido não-newtoniano de viscosidade η é confinado entre duas placas paralelas e submetido a um campo magnético radial. O fluido externo é não-magnético e de viscosidade desprezível. 16
- 2.4 Módulo da contribuição não-newtoniana magneto-viscosa em função do cisalhamento adimensional ξ . Aqui $\chi = 5$ e $0.1 \leq \lambda_2 \leq 0.9$ em passos de 0.1. Cores de cinza mais claro significam maiores valores de λ_2 . As curvas tracejadas (contínuas) identificam um regime de *shear thickening* (*thinning*). 21
- 2.5 Força de adesão F em função do espaçamento L para o caso de aparato elástico e cisalhamento nulo, com separação inicial entre as placas $b_0 = 1.5$. O rótulo de cores refere-se a valores distintos de λ_2 : 0 (curva preta), 0.5 (curva cinza-escuro), and 0.8 (curva cinza-claro). 27
- 2.6 O valor máximo da força de adesão F_{max} em função de λ_2 , no limite de cisalhamento nulo, para três valores de b_0 : 1.3, 1.5, e 1.7. 28
- 2.7 O valor máximo da força de adesão F_{max} em função de λ_2 para $b_0 = 1.5$, e diferentes valores de ξ : 0, 2, 12, e 50. 30

- 2.8 Força de adesão F para o caso de aparato elástico e cisalhamento não-nulo, em função do espaçamento L , para $b_0 = 1.5$, (a) $\xi = 2$, (b) $\xi = 12$. O rótulo de cores é o mesmo utilizado na Fig. 2.5. 31
- 3.1 Ilustração esquemática da formação de longas cadeias e colunas de partículas num fluido MR a partir da aplicação de um campo magnético externo. As estruturas formadas exercem uma força de sustentação efetiva que resulta na propriedade de *yield stress*. Figura adaptada da Ref. [51]. 32
- 3.2 Representação esquemática do aparato de *probe-tack*, onde uma gota circular de fluido MR de raio R e espessura b está confinada entre duas placas paralelas e é submetida a uma configuração de campo magnético (a) perpendicular e (b) radial. A direção das correntes elétricas fluindo nas bobinas também é indicada. A placa superior é levantada a uma velocidade constante V através da aplicação de uma força F . A placa inferior permanece em repouso, localizada no plano que fica no meio das bobinas (plano $x - y$). 34
- 3.3 Força de adesão para o caso de campo perpendicular $F_{\perp}$ em função do espaçamento b , para (a) $N_B^{\perp} = 0.15$ e três valores de $N_N^{\perp}$; e (b) contrastando o caso de campo aplicado nulo (curva tracejada) com aqueles que assumem a ação do campo perpendicular, para um fluido MR que apresenta *yield stress* independente do campo (curva preta contínua) e dependente do campo magnético (curva cinza contínua). Assumimos que $\beta = 3.16 \times 10^3$, $b_0 = 10$, e $\chi = 0.1$. 41
- 3.4 Força de adesão para o caso de campo radial F_r em função do espaçamento b , para (a) $N_B^r = 1.5$ e três valores de N_N^r ; e (b) contrastando o caso de campo aplicado nulo (curva tracejada) com aqueles que assumem a ação do campo radial para um fluido MR que apresenta *yield stress* independente do campo (curva preta contínua) e dependente do campo (curva cinza contínua). Assumimos $b_0 = 10$ e $\chi = 0.1$. 45

CAPÍTULO 1

Introdução

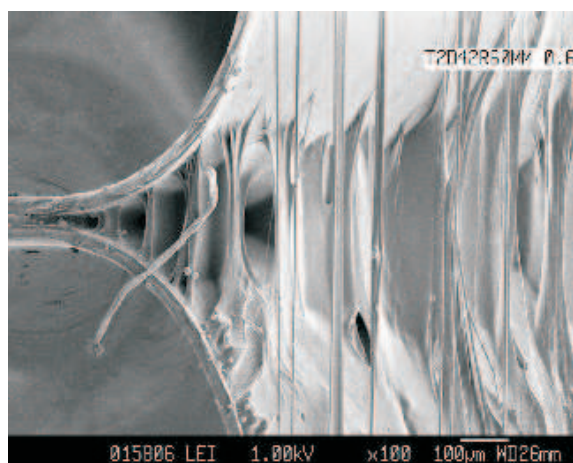


Figura 1.1 Imagem de descolamento de um adesivo mole convencional sensível à pressão, obtida através de microscopia eletrônica de varredura [1]. A propriedade de grande adesão do material se origina na formação das complexas estruturas fibrilares mostradas na figura.

Adesivos são ferramentas de suma importância e grande utilidade na natureza, desde a biologia de seres complexos, até o desenvolvimento tecnológico humano. As propriedades adesivas dos materiais variam quase que continuamente num espectro que vai desde adesão nula até os adesivos fluidos (“moles”) mais elaborados e resistentes. Nesse contexto, o fenômeno da adesão entre duas superfícies é multifacetado e altamente complexo, incluindo diversos efeitos físicos como interação eletrostática, difusão de moléculas através da interface, forças de van der Waals, além de interações mecânicas elásticas. A busca constante de materiais capazes de aderir em superfícies variadas levou ao desenvolvimento dos adesivos convencionais modernos (Fig. 1.1), em sua maioria fluidos complexos orgânicos e polímeros, nos quais o processo de adesão se dá de maneira muito intensa e irreversível.

No entanto, uma das propriedades mais desejáveis para um adesivo ideal seria a capacidade

de ajustar sua força adesiva, podendo ativá-la ou inibi-la de maneira reversível através de um mecanismo de controle externo. Fluidos magnéticos são candidatos potenciais a esse tipo de comportamento e serão o objeto principal de nosso estudo nesse trabalho.

1.1 Adesão com fluidos viscosos não-magnéticos

A compreensão detalhada de uma variedade de processos de adesão é dificultada pela complexidade inerente dos materiais adesivos. Adesivos típicos são fluidos baseados em polímeros compostos por moléculas pesadas e possuem propriedades reológicas bastante complicadas, sendo em sua maioria pouco compreendidos [2, 3]. Uma maneira conveniente de abordar os efeitos complicados de adesivos convencionais moles tem sido recentemente explorada por alguns grupos de pesquisa que examinaram os fundamentos da adesão em fluidos viscosos [4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11]. Nesses estudos foi demonstrado que embora muitos fluidos não sejam rigorosamente adesivos verdadeiros, no sentido de que não apresentam todas as propriedades características de uma cola (como interações químicas com o substrato e processos de secagem), eles apresentam propriedades físicas que são similares às daquelas dos adesivos moles comuns. Dentre elas está a propriedade de um fluido comum de unir superfícies que o confinam, que advém diretamente do caráter viscoso do fluido.

Um método simples e relativamente eficiente para acessar e caracterizar propriedades adesivas importantes, tanto em adesivos convencionais quanto em fluidos viscosos, é fornecido pelo chamado teste de *probe-tack* [12, 13]. Na versão de placas paralelas desse teste uma amostra de material é primeiramente confinada entre duas placas planas paralelas e depois a placa superior é levantada a uma taxa conhecida enquanto a força aplicada é medida. Quando a placa superior é suspensa, o gradiente de pressão causa um fluxo viscoso cisalhante para dentro no plano do adesivo ou filme de fluido, produzindo uma força adesiva normal à placa superior e contrária ao levantamento. O resultado é uma curva de força-distância que quantifica a força de adesão da amostra sob tensão em função do deslocamento da placa superior.

A forma específica dessas curvas é determinada pelo mecanismo microscópico de desco-

lamento. Por definição, o descolamento acontece devido ao escoamento viscoso que provoca a entrada de ar (ou outro fluido externo) entre as duas superfícies a serem separadas. Este processo pode dar-se através das bordas da interface fluido-ar, onde ocorrem instabilidades viscosas, ou através da formação de bolhas de ar no interior fluido. Diante da presença de tantos efeitos intrinsecamente distintos no processo de descolamento de adesivos complexos, uma boa estratégia é estudar separadamente fenômenos adesivos em fluidos mais simples de modo a entender o papel de cada contribuição durante o processo. Nesse sentido os estudos de adesão abordados nas Refs. [4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11] fizeram amplo uso do teste de *probe-tack* para adquirir conhecimento sobre as propriedades adesivas de fluidos viscosos. Inicialmente, a situação mais simples de fluidos newtonianos foi considerada e depois diferentes níveis de complexidade reológica foram implementados de modo a apreciar a natureza fluida de processos adesivos mais tradicionais.

1.1.1 Fluidos newtonianos

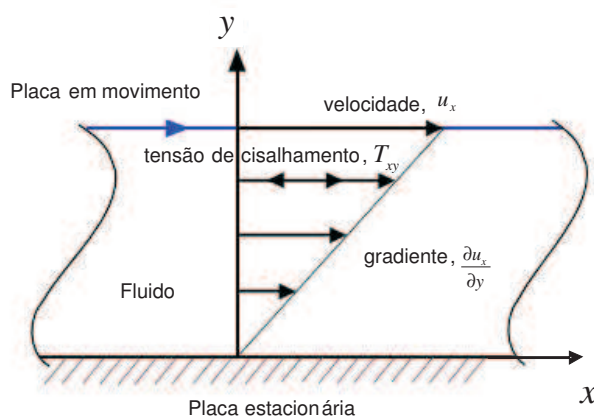


Figura 1.2 Cisalhamento puro de um filme de fluido newtoniano. A lâmina superior de fluido desloca-se a uma velocidade constante não-nula, enquanto a velocidade é nula no plano em contato com a superfície da base. Figura adaptada da Ref. [14].

Numa primeira etapa da investigação sobre adesão em fluidos viscosos consideremos as propriedades adesivas de fluidos newtonianos, ou seja, aqueles que apresentam viscosidade constante, dependente apenas de parâmetros termodinâmicos como temperatura e concentração. Esses fluidos são basicamente substâncias puras ou soluções simples, sendo muito comuns na natureza, a exemplo da água. Foi na verdade através do estudo desse conjunto de fluidos que Newton definiu viscosidade como uma propriedade material macroscópica inerente aos fluidos, sendo dada por

$$\eta = \frac{T_{xy}}{\dot{\epsilon}}, \quad (1.1)$$

onde $\dot{\epsilon} = \partial u_x / \partial y$ é a taxa de cisalhamento da velocidade u_x ao longo do eixo-y, e T_{xy} é a tração por unidade de área exercida pelo fluido. Essa definição nos diz que para cisalhar a superfície livre de um filme de fluido a uma velocidade constante devemos puxá-la a uma dada tração proporcional a sua viscosidade (veja a Fig. 1.2).

A análise do processo adesivo envolvendo esses tipos de fluido é muito importante, pois revela aspectos da adesão induzidos por efeitos viscosos simples, na qual a dissipação de energia no líquido impede o seu escoamento.

Na Ref. [5] o teste de *probe-tack* é utilizado para caracterizar teoricamente e experimentalmente as curvas de força-distância de tais fluidos. Através dos experimentos constatou-se que a formação de instabilidades viscosas exerce pouca influência sobre o comportamento das curvas. Conseqüentemente são também desprezíveis efeitos de tensão superficial. Com base nessas constatações, através de um modelo teórico bidimensional simples para o escoamento, análogo ao que será usado posteriormente na seções 2.2 e 2.4, é feito o cálculo da força de levantamento F da placa superior em função do espaçamento b entre as placas

$$F = \frac{3\pi\eta R_0^4 b_0^2 V}{2b^5}, \quad (1.2)$$

onde R_0 e b_0 são o raio inicial da gota de fluido e o espaçamento inicial entre as placas respectivamente, V é a velocidade de levantamento da placa superior. O cálculo é feito a partir da integração da diferença de pressão hidrodinâmica ao longo da área da amostra de fluido, que é explicitada pela lei de Darcy [5], considerando que a gota de fluido é incompressível e permanece circular durante o processo de levantamento da placa.

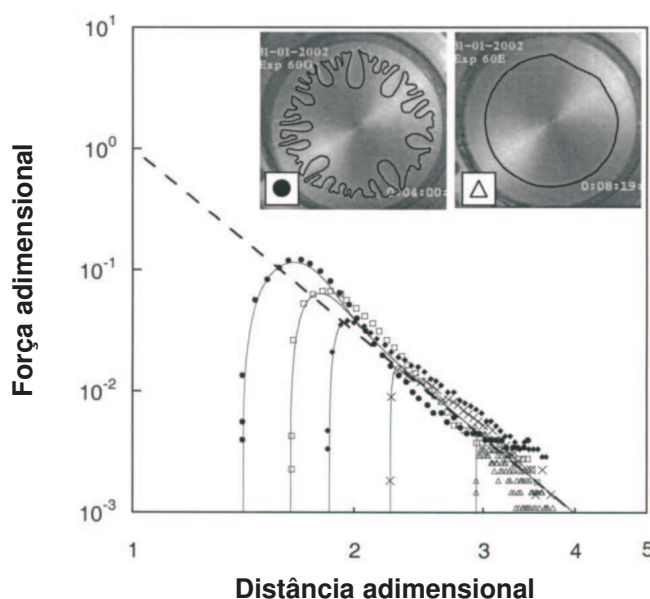


Figura 1.3 Curvas de força-distância num gráfico log-log para diferentes valores de espaçamento inicial, obtidas na Ref. [5] para um fluido newtoniano. Os pontos correspondem às medidas experimentais, enquanto a linha tracejada corresponde à previsão dada pela Eq. (1.2). As curvas contínuas foram obtidas teoricamente levando em conta a elasticidade do aparato.

Note que nas curvas de força-distância ilustradas na Fig. 1.3, o valor da força de levantamento para o espaçamento inicial é nulo, depois cresce rapidamente atingindo um máximo e somente na cauda é que a lei de potência de b^{-5} é observada. Esse efeito se deve à elasticidade intrínseca da sonda do próprio aparato experimental, que pode ser considerada num regime linear com a deformação. Através desse argumento podemos chegar a uma equação diferencial para a força adesiva em função da deformação do material cujas soluções correspondem às curvas de adesão observadas experimentalmente. Uma descrição mais detalhada desse efeito será dada no Cap. 2. Através das curvas de força-distância também é possível calcular o trabalho de separação das placas, que é dado pela área abaixo das curvas.

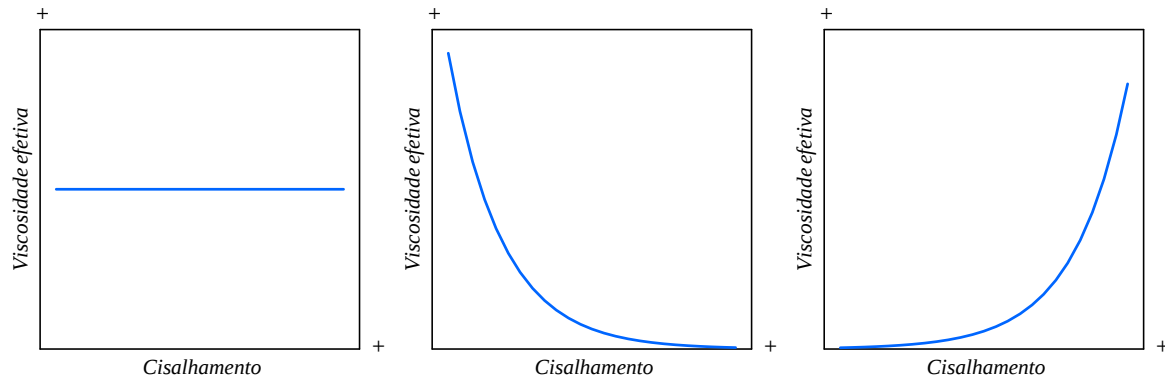


Figura 1.4 Esboço qualitativo de curvas da viscosidade efetiva em função da taxa de cisalhamento nos casos de um fluido newtoniano (esquerda), não-newtoniano com comportamento *shear-thinning* (centro) e não-newtoniano com comportamento *shear-thickening* (direita).

1.1.2 Fluidos não-newtonianos

Na tentativa de melhorar nossa compreensão sobre o processo de adesão, devemos aumentar o grau de complexidade dos fluidos viscosos de modo que possam apresentar respostas reológicas complexas similares aos adesivos convencionais. Uma primeira correção que pode ser feita no modelo de fluido viscoso newtoniano é permitir que sua viscosidade efetiva dependa da taxa de cisalhamento ou outro parâmetro externo. Chamaremos de viscosidade efetiva ou total a grandeza definida pela Eq. (1.1) a cisalhamento constante, mesmo que a tração exercida possua uma dependência não-linear com o cisalhamento. Ao considerar tal dependência, estaremos lidando com os chamados fluidos não-newtonianos, cujo comportamento com relação ao cisalhamento pode ser classificado como: *shear-thinning*, quando a viscosidade total decresce com o cisalhamento, ou *shear-thickening*, quando a viscosidade total cresce com o cisalhamento (ver Fig. 1.4). Como exemplo de fluidos não-newtonianos do tipo *shear-thinning* podemos citar argilas e cristais líquidos, enquanto exemplos de *shear-thickening* são seiva vegetal e maizena misturada a água. A dependência funcional específica da viscosidade efetiva com o cisalhamento pode dar-se de várias maneiras distintas de acordo com o material em questão.

Outro aspecto importante na reologia de adesivos poliméricos é sua propriedade viscoe-

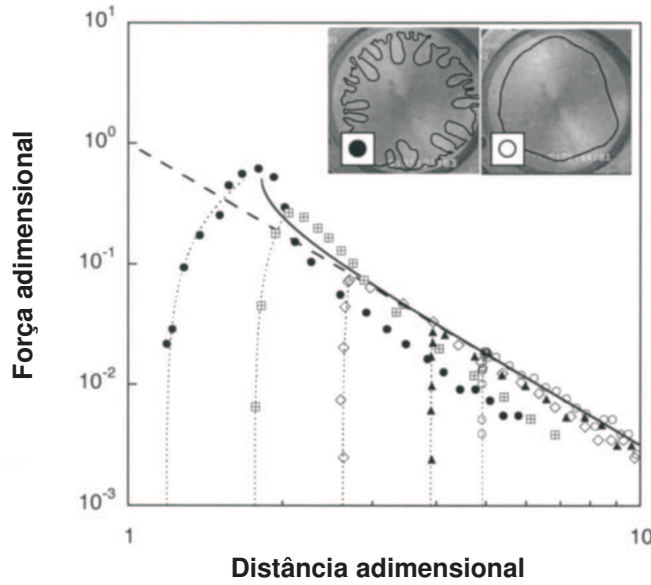


Figura 1.5 Curvas de força-distância num gráfico log-log para diferentes valores de espaçamento inicial, obtidas na Ref. [5] para um fluido não-newtoniano. Os pontos correspondem às medidas experimentais, enquanto a linha tracejada corresponde à previsão dada pela Eq. (1.5). As curvas pontilhadas e contínuas foram obtidas teoricamente levando em conta a elasticidade do aparato.

lástica. Muitos adesivos possuem um comportamento elástico para pequenas tensões de cisalhamento, enquanto fluem para tensões maiores que um dado limite. Esse comportamento intermediário entre líquidos e sólidos manifesta-se em suspensões coloidais onde estruturas microscópicas complexas são formadas, e é modelado através da inclusão do *yield stress* no tensor das tensões do fluido. O *yield stress* seria portanto o módulo da tensão de cisalhamento máxima que um dado fluido viscoelástico suportaria sem escoar. No modelo de Bingham esse efeito é descrito no tensor quando o fluido é cisalhado da seguinte maneira

$$T_{xy} = \eta \frac{\partial u_x}{\partial y} + \sigma_y, \quad \text{para } T_{xy}^2 > \sigma_y^2 \quad (1.3)$$

além de

$$\frac{\partial u_x}{\partial y} = 0, \quad \text{para } T_{xy}^2 < \sigma_y^2, \quad (1.4)$$

onde σ_y denota o *yield stress* do fluido.

Esse modelo é utilizado nas Refs. [5, 15, 16] para abordar os efeitos adesivos de fluidos que

apresentam *yield stress*. Nesse caso, uma análise similar àquela feita para o teste de *probe-tack* com fluidos newtonianos foi realizada e como resultado foi obtida a seguinte expressão para a força de adesão

$$F = \frac{2\pi R_0^3 b_0^{3/2} \sigma_y}{3b^{5/2}}. \quad (1.5)$$

Note que a equação bidimensional governante do fluxo nesse caso não é exatamente igual àquela utilizada para fluidos newtonianos. Aqui os efeitos de *yield stress* são considerados muito maiores que os efeitos viscosos e uma lei análoga a lei de Darcy [16] pode ser derivada.

As curvas de força-distância ilustradas na Fig. 1.5 também foram obtidas experimentalmente na Ref. [5] e os resultados teóricos se mostram em boa concordância. Ao contrário do que acontece no caso de fluidos newtonianos, nesse caso as curvas não apresentam um regime dominado pela elasticidade instrumental, pois para pequenos espaçamentos a força de levantamento ainda não atingiu magnitude suficiente para fazer o fluido escoar.

Devido à simplicidade da abordagem teórica bem como a grande concordância com os dados experimentais, usaremos posteriormente uma descrição similar desse problema para obter curvas força-distância que envolva o caso de fluidos magnéticos complexos.

1.2 Fluidos magnéticos

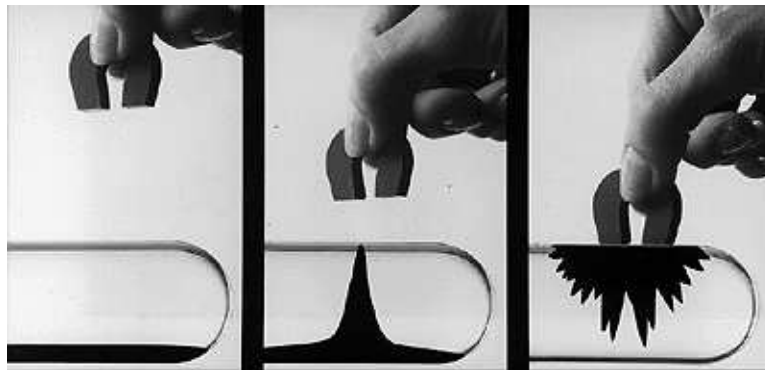


Figura 1.6 Alinhamento de um fluido magnético às linhas de campo magnético de um ímã [17].

Fluidos magnéticos são suspensões coloidais de pequenas partículas magnéticas dipolares

em um líquido portador não-magnético [18, 19]. A suspensão se mantém estável, sem aglomeração e decantamento das partículas magnéticas, mesmo na presença de campos magnéticos intensos. Isso é possível graças aos efeitos da agitação térmica browniana e de um revestimento químico artificial das partículas, de natureza iônica ou surfactante, que contrariam a atração magnética e evitam sua aglutinação. Embora as partículas dispersas no fluido sejam ferromagnéticas (ou ferrimagnéticas), como um todo, a suspensão comporta-se de maneira superparamagnética, ou seja, apresenta uma alta magnetização em resposta a aplicação de um campo magnético.

Uma interessante característica desses fluidos é a possibilidade de manipulação de seu escoamento através da aplicação de campos magnéticos externos, a chamada ferrohidrodinâmica (veja a Fig. 1.6). Essa propriedade lhes garante inúmeras utilidades práticas como aplicações em engenharia e biomedicina. Além disso, a comunhão de dinâmica dos fluidos com contribuições magnéticas resulta em vários comportamentos inovadores no âmbito da pesquisa básica, como processos de formação de padrões e instabilidades induzidos por campos magnéticos.

Destacaremos dois principais tipos de fluidos magnéticos em nosso estudo: os ferrofluidos e os fluidos magneto-reológicos (MR), ilustrados na Fig. 1.7. A principal diferença microscópica entre eles está no tamanho das partículas magnéticas. Enquanto ferrofluidos possuem partículas com diâmetros da ordem de alguns nanômetros, nos fluidos MR estão presentes partículas da ordem de micrômetros. Essa diferença torna-se ainda mais evidente com respeito as propriedades reológicas macroscópicas dos fluidos na presença de campos magnéticos fortes. Os ferrofluidos escoam facilmente e embora possam apresentar algumas características não-newtonianas elas são tênues e não alteram o caráter viscoso geral do fluido. Já nos fluidos MR encontramos respostas muito diferentes devido à aplicação de campos externos intensos que induzem comportamento similar ao de sólidos, podendo em alguns casos mudar de estado através de um processo de gelificação [20]. Isso faz com que este material apresente uma série de propriedades reológicas complexas, inclusive *yield stress*.

Dentre as investigações que consideram a natureza fluida da adesão uma é particularmente atraente, aquela que trata de fenômenos adesivos em fluidos magnéticos [11]. Em contraste com as Refs. [4, 6, 5, 7, 8, 9, 10] nas quais o fluido estudado é não-magnético, na Ref. [11] o



Figura 1.7 Ilustração de ferrofluido (à esquerda) [21] e fluido MR (à direita) [22], ambos sob influência de um campo magnético não-uniforme.

material é um ferrofluido viscoso newtoniano sujeito a um campo magnético externo. Foi mostrado [11] que, diferentemente de materiais adesivos convencionais, as propriedades adesivas de um ferrofluido podem ser aumentadas ou reduzidas através da mudança na intensidade ou simetria de configuração de um campo magnético aplicado. Outra possibilidade de ajustar magneticamente o sistema se dá através da manipulação das propriedades materiais do ferrofluido. Tudo isso estabelece uma conexão sugestiva entre adesão e fenômenos ferrohidrodinâmicos, permitindo o controle de importantes propriedades adesivas através de meios magnéticos.

No entanto, nenhum estudo sistemático do fenômeno de adesão com fluidos magnéticos levou em conta possíveis propriedades não-newtonianas desses materiais. De fato, a viscosidade apresentada em Ref. [11] é tomada como constante, desconsiderando portanto eventuais efeitos reológicos relacionados ao cisalhamento físico da amostra e à aplicação do campo magnético externo [18, 19, 23, 24, 25].

Note que ao abordar propriedades adesivas de fluidos magnéticos nos referimos aos fenômenos de adesão relacionados a efeitos viscosos e plásticos dessas suspensões, como foi explicado nos tópicos introdutórios deste trabalho. Neste sentido, as mudanças no desempenho adesivo desses materiais são causadas por alterações em suas propriedades reológicas, induzidas através da aplicação de um campo magnético externo. Portanto, não foram levados em consideração efeitos de indução em superfícies magnéticas.

1.3 Roteiro da dissertação

Prosseguimos nesse trabalho dando continuidade ao estudo do fenômeno de adesão em fluidos magnéticos, onde incluímos efeitos não-newtonianos viscosos e elásticos induzidos por um campo magnético externo.

No Cap. 2 desta tese nós analisamos as propriedades adesivas de um ferrofluido não-newtoniano que apresenta formação de cadeias de partículas magnéticas submetido a uma configuração de campo magnético que tende a evidenciar a ação de efeitos magnéticos enquanto o fluido é projetado internamente durante um teste do tipo *probe-tack*. A investigação desse evento de descolamento particular nos permite examinar como o campo magnético, o cisalhamento viscoso e a formação de pequenas cadeias afetam a viscosidade da amostra bem como sua força de adesão [26]. De uma maneira geral, nosso estudo conecta as áreas de pesquisa sobre adesão, reologia e ferrohodinâmica, que são por si só altamente interdisciplinares.

No Cap. 3 nós estudamos as propriedades adesivas de um fluido MR confinado submetido a duas configurações distintas de campo magnético: (a) perpendicular, quando o campo aplicado é uniforme e atua perpendicularmente às placas do aparato de *probe-tack*; e (b) radial, para um campo radial e crescente no plano, sendo tangencial às placas. Isso nos permite examinar como a força adesiva do fluido MR depende da orientação mútua do campo magnético e a direção da deformação. Sob essas circunstâncias, a influência combinada do *yield stress* dependente do campo magnético bem como o arranjo deste campo na determinação da resposta adesiva do fluido é estudada analiticamente. A força de adesão obtida para a situação geral envolvendo tanto campo magnético como *yield stress* induzido pelo campo é contrastada com as respostas de outros dois cenários importantes: o primeiro quando não há campo aplicado (fluido com *yield stress*, mas efetivamente não-magnético), e o segundo quando o campo magnético é aplicado mas assumimos que o fluido apresenta um baixo *yield stress* (o fluido é magnético, mas de *yield stress* insensível ao campo). Em suma, o propósito do Cap. 3 é estudar o acoplamento entre estruturas induzidas pelo campo magnético e interações hidrodinâmicas, além de examinar seu papel na promoção de um controle para a força adesiva de fluidos MR através da aplicação de um campo magnético [27].

Por fim, nossas conclusões mais significativas sobre os sistemas abordados são apresentadas no Cap. 4.

Formação de cadeias magnéticas em ferrofluidos

2.1 Literatura vigente: estudos teóricos e experimentais

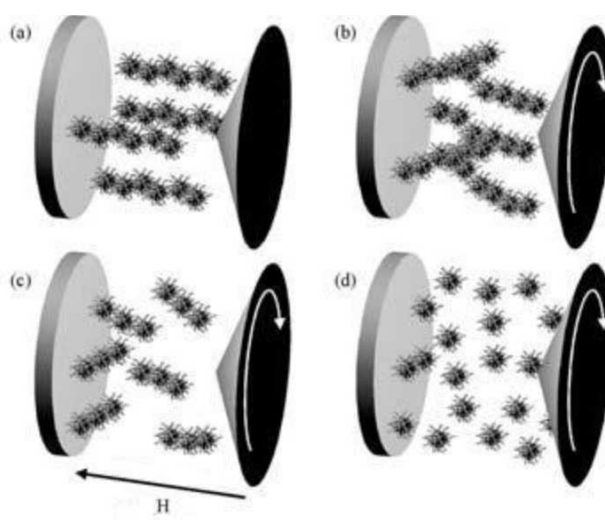


Figura 2.1 Esquema ilustrativo de um ferrofluido que apresenta formação de cadeias de partículas [29]. O campo magnético é mantido constante na direção axial enquanto a rotação do fluido é aumentada (de (a) para (d)). As cadeias se alinham na direção do campo magnético e sofrem torque devido ao fluxo de velocidades do ferrofluido. Quando a taxa de cisalhamento é muito alta as cadeias são destruídas.

Recentes estudos sobre propriedades reológicas de ferrofluidos fortemente magnetizáveis revelaram uma grande variedade de comportamentos não-newtonianos nessas suspensões, tais como *shear-thinning*, *shear-thickening*, diferenças normais de estresse, respostas viscoelásticas, e uma viscosidade (Trouton) de alongamento variável. Essas várias manifestações reológicas foram investigadas tanto experimentalmente [28, 29] quanto teoricamente [25, 30, 31, 32, 33, 34] e são atribuídas à formação de pequenas cadeias de partículas magnéticas contidas na suspensão quando esta é submetida a um forte campo magnético. Esse efeito pode

ser modelado por um ferrofluido polidisperso que consiste numa pequena fração de partículas grandes que formam cadeias curtas, fazendo com que o fluido apresente comportamento não-newtoniano, mais uma grande fração de partículas menores que determinam as propriedades magnéticas gerais do fluido.

De acordo com esses estudos, as diferenças na viscosidade de ferrofluidos induzidas por campo magnético (efeitos magneto-viscosos) têm origem na competição entre efeitos de torque magnético produzido pelo campo e torque mecânico produzido pelo fluxo. Esse tipo de fenômeno é ainda mais significativo em ferrofluidos pouco diluídos, cuja interação magnética entre as partículas leva a formação mais frequente de pequenas cadeias. Uma vez formadas, essas cadeias mudam significativamente as propriedades reológicas do fluido, como a viscosidade, através de três efeitos básicos (veja a Fig. 2.1): o alinhamento das cadeias com o campo magnético externo (Fig. 2.1(a)), que se dá devido ao torque magnético e produz uma direção preferencial para a disposição das cadeias; torque sobre as cadeias provocado por um fluxo de alongamento do fluido portador (Fig. 2.1(b)), que eventualmente defletirá as cadeias na direção do fluxo; ou destruição das cadeias por altas taxas de cisalhamento (Fig. 2.1(c) e (d)), já que o alto cisalhamento tende a separar as partículas componentes das cadeias. A adição desses efeitos resulta em comportamentos não-newtonianos diversificados capazes de serem medidos e teorizados, como mostraremos mais adiante neste capítulo.

Através de cuidadosos experimentos de espalhamento de nêutrons em ângulos pequenos [28], a formação de pequenas cadeias de partículas magnéticas foi de fato constatada (Fig. 2.2). O padrão de espalhamento deveria ser circular caso as partículas espalhadoras fossem esféricas, no entanto o padrão se mostra uma elipse (Fig. 2.2(a)), o que indica que as estruturas espalhadoras apresentam certa assimetria e que devem ser pequenas cadeias de partículas. Ao submeter a amostra de ferrofluido a um fluxo de alongamento as cadeias de partículas sofrem um torque mecânico devido ao campo de velocidades do fluido portador e mudam seu alinhamento, efeito este que pode ser visto pela deflexão do padrão elipsoidal a medida que o cisalhamento do fluxo é aumentado (Fig. 2.2(b)). As observações feitas estão de acordo com os modelos teóricos desenvolvidos e abrem a possibilidade de um estudo sistemático do efeito da formação das cadeias sobre o fenômeno da adesão.

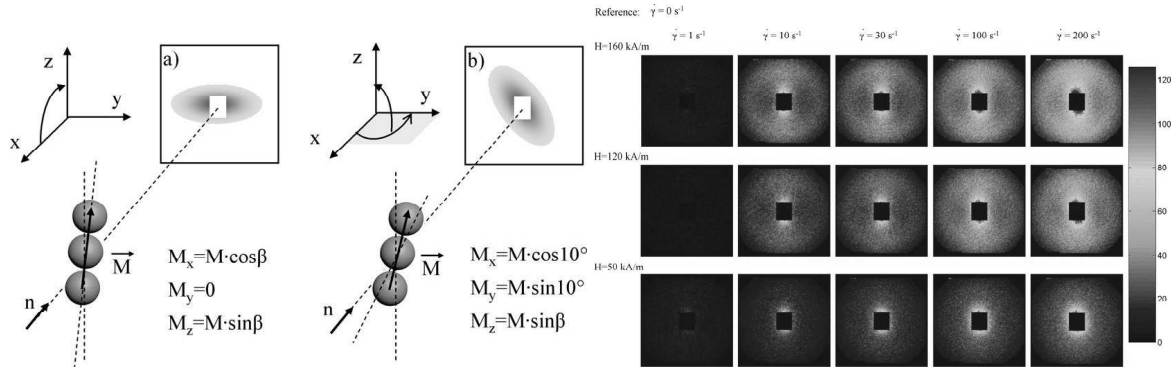


Figura 2.2 À esquerda está um esquema de como o desalinhamento das cadeias devido ao fluxo distorce o padrão de espalhamento dos nêutrons. À direita está o resultado experimental obtido na Ref. [28] para um padrão de espalhamento que acusa a existência de cadeias numa amostra de ferrofluido.

2.2 Fenômenos de adesão com ferrofluidos que apresentam cadeias

Considere a seguir o problema de adesão viscosa utilizando um ferrofluido que apresenta formação de cadeias de partículas magnéticas. A figura 2.3 esboça a geometria de um sistema *probe-tack* no qual um ferrofluido não-newtoniano e incompressível de viscosidade η é confinado entre duas placas planas paralelas e estreitamente espaçadas. O fluido externo é não-magnético e de viscosidade desprezível, a exemplo do ar, que permeia todo o aparato. Como nas Refs. [4, 5, 6, 11] nós consideramos que o aparato tem uma constante elástica denotada por k . Uma das extremidades do aparato se move a uma velocidade específica V , submetendo a placa superior a uma força de levantamento de módulo F . A placa inferior é mantida fixa em $z = 0$, onde o eixo- z aponta na direção perpendicular às placas. A distância inicial entre as placas é representada por b_0 e o raio inicial da gota de ferrofluido por R_0 . Para incluir a deformação elástica do aparato durante o levantamento, definimos L como a distância da placa inferior ao ponto de levantamento do aparato a velocidade constante V , de modo que em $t = 0$ temos $L = b_0$. A um dado tempo t a separação entre as placas é $b = b(t)$ enquanto a deformação devido ao alongamento do aparato é $L - b$, onde $L = b_0 + Vt$. Devido à elasticidade do aparelho de medida, o espaçamento entre as placas b não é necessariamente equivalente a L . No caso de um aparelho completamente rígido nós temos $b = L$ e $\dot{b} = db/dt = V$, ou seja, o aparato não se

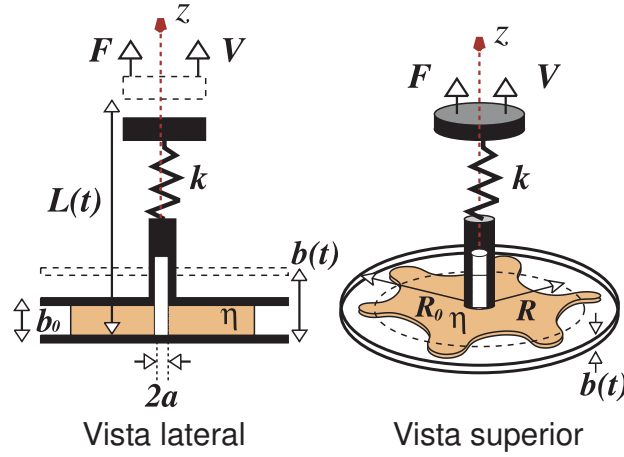


Figura 2.3 Representação diagramática do aparato de *probe-tack*, onde um ferrofluido não-newtoniano de viscosidade η é confinado entre duas placas paralelas e submetido a um campo magnético radial. O fluido externo é não-magnético e de viscosidade desprezível.

deformaria e as placas se afastariam a uma taxa constante.

A amostra de ferrofluido é submetida a um campo magnético aplicado na direção radial cilíndrica dado por [35, 36]

$$\mathbf{H}_a = \frac{H_0 a}{r} \hat{\mathbf{r}}, \quad (2.1)$$

onde a é o raio da fonte geradora de campo, que é um cilindro localizado no centro da amostra e formado por um arranjo especial de magnetos, r é a distância radial da origem do sistema de coordenadas (localizada no centro da fonte), $\hat{\mathbf{r}}$ é o vetor unitário na direção radial e H_0 é uma constante que indica a intensidade do campo na distância $r = a$. As condições experimentais requeridas para a obtenção de tal campo radial são discutidas na Ref. [35]. Note que essa configuração de campo ($H_a \sim 1/r$) é particularmente conveniente para examinar as mudanças na viscosidade do ferrofluido induzidas pelo campo magnético durante o teste *probe-tack*: enquanto as placas são separadas o fluido projeta-se radialmente para dentro, onde o campo magnético é mais forte, o que induz efeitos magneto-viscosos ainda mais significativos.

Nosso objetivo principal é calcular a força de levantamento F em função do deslocamento L , levando em conta tanto contribuições hidrodinâmicas quanto magnéticas. Primeiro, nós calculamos F analiticamente para o caso do aparato completamente rígido e subsequente nós

abordamos a situação mais realística na qual a elasticidade deste é levada em consideração, através da resolução numérica da equação diferencial correspondente. Nós seguimos Refs. [5, 8] e derivamos F assumindo que a interface da gota de ferrofluido permanece circular durante o processo de levantamento, com um raio dependente do tempo definido como $R = R(t)$. Esta suposição é razoável já que nos experimentos realizados nas Refs. [5, 8] constata-se que há pouca influência da deformação da interface (*fingering*) na força de adesão, desde que o processo de levantamento se mantenha nos limites de separação pequena e alta viscosidade do fluido interior. A conservação do volume da gota de ferrofluido incompressível nos leva a seguinte relação $(R^2 - a^2)b = (R_0^2 - a^2)b_0$.

Antes de tudo, para estudar a hidrodinâmica do sistema usaremos a equação de Navier-Stokes com a inclusão de termos que representam os efeitos magnéticos no ferrofluido

$$\rho \left[\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right] = -\nabla P + \eta \nabla^2 \mathbf{u} + \mu_0 M \nabla H. \quad (2.2)$$

Nós seguimos as aproximações padrão de Rosensweig [18] e outros [19, 37, 38, 39] e assumimos que a magnetização $\mathbf{M}$ do ferrofluido é colinear com o campo aplicado. Quando isto é verdade, a força magnética por unidade de volume é dada por $\mu_0 M \nabla H$, onde μ_0 é a permeabilidade magnética do vácuo e H é o campo magnético *local*. Ainda na equação, ρ é a densidade do ferrofluido, $\mathbf{u}$ é sua velocidade tridimensional e P é a pressão hidrodinâmica tridimensional.

Para a geometria quase bidimensional do problema, reduzimos o fluxo tridimensional para um equivalente bidimensional ao calcular uma média da Eq. (2.2) na direção perpendicular às placas, considerando que não há fluxo nessa direção e que o perfil de velocidades é parabólico ao longo do eixo- z . Usando condições de contorno de não deslizamento ($\mathbf{u} = (u_x, u_y, u_z) = 0$ em $z = 0$ e em $z = b$, onde z é a coordenada perpendicular ao plano da célula) e considerando que as taxas do fluxo de velocidade são baixas, podemos desprezar os termos inerciais do lado esquerdo da Eq. (2.2), para então derivar uma lei de Darcy que inclui efeitos magnéticos. Escrita em coordenadas polares (r, θ) ela é dada por [39, 40]

$$\mathbf{v} = -\frac{b^2}{12\eta} \nabla \Pi, \quad (2.3)$$

onde $\mathbf{v}$ representa a média transversal da velocidade. A pressão bidimensional generalizada $\Pi = p - \psi$ contém, além de p que é a média transversal da pressão hidrodinâmica, a média

transversal ψ de uma pressão magnética representada pelo potencial escalar

$$\Psi = \mu_0 \int_0^H M dH. \quad (2.4)$$

Como as quantidades observáveis (por exemplo, a velocidade $\mathbf{v}$ do fluido) são determinadas por gradientes em Π , podemos, sem perda de generalidade, assumir que a pressão generalizada do fluido externo é constante e igual a pressão atmosférica.

Levando em conta as considerações previamente descritas, o arranjo do teste de *probe-tack* define um tipo particular de fluxo no qual o campo de velocidades possui vorticidade nula e pode ser escrito (em coordenadas polares bidimensionais) como $\mathbf{v} = (-\dot{\epsilon}r/2, 0)$, onde o parâmetro $\dot{\epsilon} = \dot{b}/b$ representa a taxa de cisalhamento (ou alongamento) do fluxo. Essa expressão segue diretamente da conservação do volume da gota circular durante o levantamento, onde, por simplificação, foram desconsiderados termos da ordem quadrática de a/r . Através dessa relação explícita para o campo de velocidades, o campo de pressões é diretamente obtido. Para uma descrição completa do problema necessitamos de condições de contorno na interface entre os fluidos, que será discutida na seção 2.3.

Com o intuito de explorar as propriedades não-newtonianas de um ferrofluido através da formação de cadeias de partículas magnéticas, utilizamos a lei de Darcy generalizada descrita acima levando em consideração efeitos magneto-viscosos contidos na viscosidade total η . Para tanto, procedemos na próxima seção com o cálculo da viscosidade efetiva do fluido na presença do campo.

2.3 Efeitos do campo magnético na viscosidade

A partir deste ponto e até o fim desse capítulo estaremos tratando dos resultados expostos no nosso trabalho publicado na Ref. [26]. Nossa primeira tarefa é computar a viscosidade não-newtoniana η que aparece na Eq. (2.3) para descobrir como ela é influenciada pelo campo magnético aplicado e também por outros efeitos relevantes conectados à formação de cadeias de partículas e cisalhamento viscoso. Nós seguimos Refs. [33, 34, 41] e assumimos que a viscosidade total é dada pela diferença de estresse normal a cisalhamento finito subtraída do

seu valor correspondente a cisalhamento nulo

$$\eta = \eta_0 + \eta_m = -\frac{[T_{rr} - T_{rr}|_{\dot{\epsilon}=0}]}{\dot{\epsilon}}, \quad (2.5)$$

onde η_0 denota a viscosidade a campo magnético nulo e η_m representa a contribuição magneto-viscosa. Note que ao contrário de estudos teóricos anteriores [33, 34] nosso campo magnético aplicado não é uniforme e possui um gradiente radial. Conseqüentemente, as respostas reológicas básicas encontradas em Refs. [33, 34], que são sensíveis a simetria do campo magnético imposto, *a priori* não podem ser tomadas como válidas para nosso sistema.

O tensor de estresse total que inclui efeitos viscosos e magnéticos, bem como formação de pequenas cadeias de partículas, é definido como [18, 19, 33, 34]

$$\begin{aligned} T_{ij} = & -\tilde{p}\delta_{ij} + 2\eta_0 v_{ij} + H_i B_j \\ & - \frac{1}{2}[(M_i h_j - M_j h_i) - \lambda_2(M_i h_j + M_j h_i)], \end{aligned} \quad (2.6)$$

onde δ_{ik} denota a função delta de Kronecker e $\tilde{p} = p + \Psi + \mu_0 H^2/2$. Além disso, $v_{ij} = (\nabla_i v_j + \nabla_j v_i)/2$, $\mathbf{H}$ é o campo magnético, $\mathbf{B}$ é o campo de indução magnética, $\mathbf{M}$ é a magnetização e $\mathbf{h} = \mathbf{M}/\chi - \mathbf{H}$, sendo χ a susceptibilidade do ferrofluido. O coeficiente de transporte λ_2 [25] é muito importante para nossa análise e está relacionado à formação de pequenas cadeias de partículas magnéticas. Sua presença no tensor de estresse leva em conta o torque sofrido pelas cadeias existentes devido à influência de um fluxo de alongamento. O valor de λ_2 foi experimentalmente constatado entre 0 e 1 [30, 42], onde $\lambda_2 \rightarrow 0$ corresponde ao caso de um ferrofluido sem cadeias (ou cadeias de apenas uma partícula) e $\lambda_2 \rightarrow 1$ está relacionado a formação de cadeias de aproximadamente 5 partículas em um ferrofluido polidisperso.

Outro ingrediente chave para nosso cálculo é a equação de relaxação para a magnetização [25]

$$\frac{dM_i}{dt} + (\mathbf{M} \times \boldsymbol{\omega})_i - \lambda_2 M_j v_{ij} = -(M_i - M_i^{eq})/\tau, \quad (2.7)$$

onde $\boldsymbol{\omega} = (\nabla \times \mathbf{v})/2$ é a vorticidade do fluxo, $M_i^{eq} = \chi H_i$ é a relação constitutiva linear para a magnetização de equilíbrio e τ é o tempo característico de relaxação da magnetização. Nessa relação são levados em consideração efeitos de torque mecânico e magnético sobre as partículas

e sobre as cadeias emergentes, sendo as partículas influenciadas por fluxos de vorticidade e as cadeias por fluxos de alongamento. Note que se $\lambda_2 = 0$ a Eq. (2.7) se reduz a equação de relaxação clássica derivada por Shliomis [23, 24]. Já que no nosso caso $\omega = 0$, e considerando a situação estacionária para a qual temos $d\mathbf{M}/dt = 0$, a Eq. (2.7) nos dá $\mathbf{M}$ em função de $\mathbf{H}$ na expressão $-\lambda_2 M_i \tau \dot{\epsilon}/2 = M_i - \chi H_i$. Podemos usar $\mathbf{B}/\mu_0 = \mathbf{H} + \mathbf{M}$ mais o fato que a componente tangencial de $\mathbf{H}$ e a componente normal de $\mathbf{B}$ serem ambas contínuas na interface cilíndrica entre os fluidos, para chegar em $\mathbf{H} = \mathbf{H}_a - \mathbf{M}$. Utilizando esta última relação na expressão obtida a partir da Eq. (2.7) obtemos

$$\mathbf{M} = \chi \Gamma \mathbf{H}_a, \quad (2.8)$$

com $\Gamma = \Gamma(\chi, \lambda_2, \xi) = 1/[1 + \chi + (\lambda_2 \xi/2)]$, onde $\xi = \tau \dot{\epsilon}$ define uma taxa de cisalhamento adimensional. Além disso, com a ajuda das Eqs. (2.4) e (2.8), e utilizando a expressão do campo local em termos do campo aplicado $\mathbf{H} = \mathbf{H}_a - \mathbf{M} = (1 - \chi \Gamma) \mathbf{H}_a$, podemos escrever um potencial escalar apropriado para a configuração de campo radial como

$$\psi(r) = \frac{\mu_0}{2} \chi \Gamma (1 - \chi \Gamma) H_a^2. \quad (2.9)$$

Ressaltamos aqui que, de acordo com a teoria utilizada, os coeficientes de transporte η_0 , λ_2 e τ são, além de parâmetros dependentes das propriedades materiais da amostra, funções de variáveis termodinâmicas como densidade, temperatura e campo magnético local [34]. Não são dependentes do cisalhamento, mas são acoplados a ele através das Eqs. (2.6) e (2.7). Portanto, quando nos referirmos à destruição das cadeias devido ao cisalhamento, estaremos indiretamente falando do acoplamento deste com λ_2 e não de uma dependência explícita. Apesar de λ_2 depender explicitamente da magnitude campo magnético, consideraremos esse efeito como secundário nos regimes de campo magnético utilizados, e tomaremos o tamanho médio das cadeias como constante em toda a amostra.

Nesse ponto nós temos todos os elementos que precisamos para obter a contribuição magneto-viscosa para a viscosidade total. Substituindo a Eq. (2.8) na fórmula do tensor de estresse total [Eq. (2.6)] e depois usando a expressão resultante para T_{rr} em Eq. (2.5) nós obtemos

$$\eta_m = -\frac{1}{2} \frac{\chi \lambda_2 \tau H_a^2}{[1 + \chi + (\lambda_2 \xi/2)]^2} \left[1 - \lambda_2 + \frac{\lambda_2 \xi}{2(1 + \chi)} \right]. \quad (2.10)$$

Essa expressão revela um acoplamento sugestivo entre o parâmetro de formação de cadeias de partículas magnéticas λ_2 e o cisalhamento adimensional ξ . Como $0 < \lambda_2 < 1$ nós notamos que $\eta_m \leq 0$, e tende a zero se as cadeias de partículas magnéticas não são formadas ($\lambda_2 \rightarrow 0$). Portanto, o caráter não-newtoniano do ferrofluido está intimamente relacionado com a existência das cadeias. Note ainda que no limite de cisalhamento muito baixo ($\xi \rightarrow 0$) η_m assume uma forma mais simples com dependência quadrática em λ_2 [$\eta_m \sim \lambda_2(1 - \lambda_2)$].

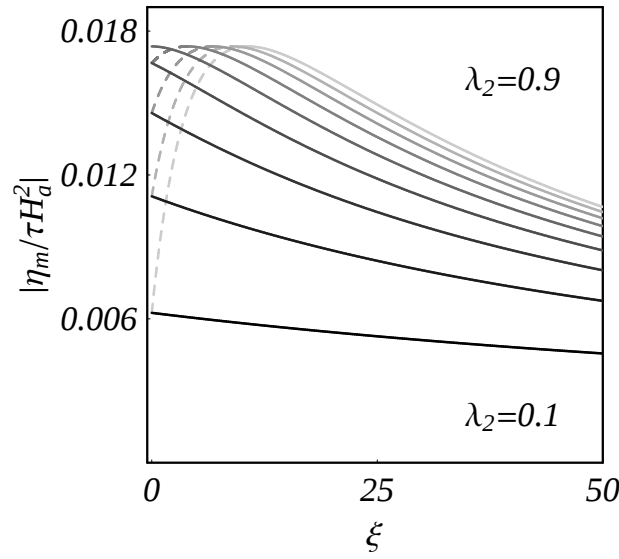


Figura 2.4 Módulo da contribuição não-newtoniana magneto-viscosa em função do cisalhamento adimensional ξ . Aqui $\chi = 5$ e $0.1 \leq \lambda_2 \leq 0.9$ em passos de 0.1. Cores de cinza mais claro significam maiores valores de λ_2 . As curvas tracejadas (contínuas) identificam um regime de *shear thickening* (*thinning*).

A figura 2.4 ilustra como a magnitude da contribuição magneto-viscosa para a viscosidade total de cisalhamento varia como função do cisalhamento adimensional ξ , com $\chi = 5$ e o parâmetro de formação de cadeia variando de $\lambda_2 = 0.1$ até $\lambda_2 = 0.9$ em passos de 0.1. Cores de cinza mais claro significam maiores valores de λ_2 . Primeiramente chamamos atenção para o fato de η_m ser negativo no intervalo utilizado $0 < \lambda_2 < 1$, logo a viscosidade magnética normalizada tende a decrescer o valor da viscosidade total η . Note que se $\lambda_2 < 0.5$ a magnitude da viscosidade magnética é uma função crescente de λ_2 . Isso pode ser entendido fisicamente

com base no alinhamento das cadeias emergentes ao longo do campo magnético local, favorecendo o fluxo na direção radial. Também é evidente que se $\lambda_2 < 0.5$ a viscosidade magnética normalizada decresce com o aumento do cisalhamento, indicando um comportamento do tipo *shear-thinning*.

Vale a pena ressaltar que, independente do valor de λ_2 , todas as curvas tendem monotonicamente a zero quando o cisalhamento é muito alto. Esse efeito era de certa forma esperado já que o alto cisalhamento destrói as cadeias. Nesse regime a interação magnética entre as partículas é superada pelas crescentes forças viscosas, o que elimina qualquer efeito não-newtoniano do fluido [29].

Por outro lado, se $\lambda_2 \geq 0.5$ as curvas atingem seus máximos a valores não-nulos de cisalhamento ($\xi = \xi_{max}$). Note que todos os máximos correspondem ao mesmo valor da viscosidade magnética normalizada dado por $\chi/81/(1 + \chi)^2$. A existência desses máximos nos leva a um comportamento do tipo *shear-thickening* para $\xi < \xi_{max}$ (curvas tracejadas) e *shear-thinning* para $\xi > \xi_{max}$ (curvas contínuas). Observe que o efeito do comportamento *shear-thickening* é mais significativo para maiores valores de λ_2 , que implicam cadeias mais longas. Essas estruturas maiores são mais suscetíveis ao torque exercido pelo fluxo de alongamento, suprimindo uma maior distensão do fluido e conseqüentemente levando a uma viscosidade total maior do que aquelas cujos valores de λ_2 são menores (isso acontece até mesmo na situação de cisalhamento nulo). Nessa região ($\xi < \xi_{max}$) a competição entre o torque e o alinhamento das cadeias resulta no comportamento *shear-thickening*. No entanto, se o cisalhamento é aumentado ainda mais ($\xi > \xi_{max}$), as cadeias tendem a ser destruídas, o que enfraquece o efeito não-newtoniano efetivo e provoca comportamento de *shear-thinning*.

2.4 Força de Adesão

A determinação do campo de pressão é um passo fundamental para o cálculo da força de adesão. Felizmente, ele pode ser diretamente computado ao inserirmos a Eq. (2.5) na lei de Darcy dada pela Eq. (2.3) e, usando a Eq. (2.10), integrarmos com respeito a r , o que nos leva

a

$$\begin{aligned}
p(r) = & \frac{3\eta_0\dot{b}}{b^3} \left\{ (r^2 - R^2) \right. \\
& - \frac{\lambda_2\tau\chi\Gamma^2 a^2 H_0^2}{\eta_0} \left[1 - \lambda_2 + \frac{\lambda_2\xi}{2(1+\chi)} \right] \ln\left(\frac{r}{R}\right) \Big\} \\
& + [\Psi(r) - \Psi(R)] + p(R),
\end{aligned} \tag{2.11}$$

onde $p(R)$ é o valor da pressão na borda da gota de ferrofluido. Para determinar $p(R)$ nós usamos o fato que $\Psi = 0$ no fluido externo (não-magnético) e a condição de pressão generalizada, que impõe o equilíbrio da componente normal do tensor de estresse através da interface entre os fluidos [19, 18]

$$\mathbf{n} \cdot (\mathbf{T}^{ff} - \mathbf{T}^{out}) \cdot \mathbf{n} = \sigma \kappa, \tag{2.12}$$

onde $\mathbf{T}^{ff}$ denota o tensor de estresse total na superfície de ferrofluido cujas componentes T_{ij} são dadas pela Eq. (2.6), $\mathbf{T}^{out}$ representa o tensor de estresse correspondente devido ao fluido externo não-magnético, e $\mathbf{n}$ denota o vetor unitário normal à interface. O termo do lado direito da Eq. (2.12) representa a contribuição relacionada à tensão superficial σ e a curvatura κ da interface. Utilizando as Eqs. (2.12), (2.8) e (2.6) nós obtemos

$$p(R) = p_0 - \frac{\mu_0}{2} \chi \Gamma [1 + \Gamma(1 - \chi \Gamma)^2 \lambda_2^2 \xi] H_a^2|_{r=R}, \tag{2.13}$$

onde p_0 denota a pressão constante fora da gota de ferrofluido. Para derivar a Eq. (2.13) nós desprezamos o termo de tensão superficial, como é usualmente feito nesse tipo de problema de adesão [4, 5, 6, 7, 8].

A força exercida pelo levantamento da placa superior é calculada pela integral da diferença do tensor de estresse ao longo desta placa, resultando em

$$\begin{aligned}
F &= \int [\hat{\mathbf{z}} \cdot \mathbf{T}^{ff} - \hat{\mathbf{z}} \cdot \mathbf{T}^{out}] \cdot \hat{\mathbf{z}} dA \\
&= \int_a^R [T_{zz}^{ff}(r) - T_{zz}^{out}(r)] 2\pi r dr,
\end{aligned} \tag{2.14}$$

onde $\hat{\mathbf{z}}$ é o vetor unitário na direção z , $\mathbf{T}^{ff}$ é tomado na superfície de ferrofluido em contato com a placa superior, enquanto $\mathbf{T}^{out}$ é tomado no fluido externo não-magnético superior à

placa. A integral é tomada sobre a área A da seção transversal da gota de ferrofluido. Sob essas circunstâncias, usando a Eq. (2.6) o cálculo da Eq. (2.14) nos leva a seguinte força *adimensional*

$$\begin{aligned}
 F = & \frac{\dot{b}}{b^5} \left\{ \left(\frac{\gamma-1}{\gamma} \right)^2 \right. \\
 & - \frac{N_N}{\gamma^2} \Delta \left[\frac{b_0}{b} (\gamma-1) - \frac{b_0^2}{b^2} \ln \left(1 + (\gamma-1) \frac{b_0}{b} \right) \right] \Bigg\} \\
 & + N_B \chi \Gamma \left[\Lambda \frac{(\gamma-1)}{\frac{b}{b_0} + (\gamma-1)} + \chi \Gamma \ln \left(1 + (\gamma-1) \frac{b_0}{b} \right) \right]
 \end{aligned} \tag{2.15}$$

onde $\gamma = (R_0/a)^2$, $N_N = \tau H_0^2 / \eta_0$ é um parâmetro adimensional relacionado ao caráter não-newtoniano da viscosidade e $N_B = (\pi \mu_0 H_0^2 a^2) / (2k\delta)$ é um parâmetro adimensional magnético para a configuração de campo radial. Os parâmetros Γ , $\Delta = -2\eta_m / (\tau H_0^2) > 0$ e $\Lambda = 2 - \chi\Gamma + \Gamma(1 - \chi\Gamma)^2 \lambda_2^2 \xi > 0$ acoplam χ , ξ and λ_2 . De maneira similar ao que foi feito em Refs. [4, 5], na Eq. (2.15) comprimentos foram rescalados por $\delta = (3\pi\eta_0 R_0^4 b_0^2 V / 2k)^{1/6}$ e velocidades por V . Vale a pena mencionar que ao lidar com o caso de aparato rígido teremos $b = L$ e portanto $\dot{b} = 1$. No entanto, mantivemos $\dot{b}$ explicitamente na Eq. (2.15) porque ele não será constante na nossa posterior análise do caso do aparato elástico.

A Eq. (2.15) para a força de adesão e a Eq. (2.10) para a contribuição magneto-viscosa da viscosidade são os resultados centrais desse capítulo, ou seja, para o problema de adesão em ferrofluidos que formam cadeias. Os efeitos físicos básicos presentes na equação da força de adesão podem ser compreendidos de maneira simples ao analisarmos os sinais dos termos magnéticos N_N e N_B . De acordo com os parâmetros realistas, termos magnéticos positivos são multiplicados por N_B na Eq. (2.15) e produzem um aumento na força de adesão, enquanto termos negativos são proporcionais a N_N e diminuem a força de adesão. O primeiro termo do lado direito da Eq. (2.15) está relacionado a contribuição puramente viscosa na ausência de qualquer efeito magnético. A competição entre essas contribuições ditará as propriedades reológicas e adesivas finais do ferrofluido não-newtoniano.

Com o propósito de engrandecer a relevância prática e acadêmica do nosso estudo teórico, nós garantimos que os valores de todos os parâmetros adimensionais relevantes utilizados são

consistentes com parâmetros físicos realísticos relacionados com instrumentos existentes do teste de *probe-tack* [4, 6, 5, 7, 8], arranjos de campo magnético radial [35], e propriedades materiais de ferrofluidos [18, 19, 28, 29, 30, 33, 34, 43, 44, 45, 46, 47, 48, 49]. Acreditamos que isso faz com que nosso trabalho se torne de interesse mais vasto e eventualmente ajude experimentais a testar as previsões do nosso modelo teórico.

Para parâmetros típicos relacionados a experimentos do tipo *probe-tack* nós tomamos [5, 6]: $k = 3.0 \times 10^5$ N/m, $R_0 = 5.0 \times 10^{-2}$ m, $b_0 = O(10^{-4}) - O(10^{-3})$ m, e $V = 7.3 \times 10^{-7}$ m/s. Para a configuração de campo magnético radial [35] nós usamos $a = 5.0 \times 10^{-3}$ m, e $H_0 = 1.6 \times 10^3$ A/m. Note que, para não exagerar as mudanças previstas para a força de adesão devido à aplicação do campo magnético, escolhemos usar a magnitude do campo radial aplicado cerca de uma ordem de grandeza menor que aquela gerada na Ref. [35], garantindo portanto efeitos de adesão consideráveis mesmo na presença de um campo mais fraco. Vale a pena ressaltar que as dimensões das placas de instrumentos de *probe-tack* reais e o tamanho da fonte de campo magnético radial são compatíveis. Embora a implementação prática desse sistema composto do aparelho de levantamento acoplado à fonte de campo magnético não seja trivial, ela é em princípio viável.

Já que a susceptibilidade magnética dos ferrofluidos varia num amplo espectro, basicamente entre 1 e 80 [18, 19, 46, 47, 48], nós tomamos $\chi = 5$ como um valor representativo. Além disso, nós consideramos que $0.1 \text{ s} \lesssim \tau \lesssim 1 \text{ s}$ [34, 49]. Em geral a viscosidade de um ferrofluido pode ser ajustada para quase qualquer fração volumétrica de partículas magnéticas através da escolha adequada da viscosidade do fluido carreador. Quanto maior a concentração de partículas magnéticas, mais viscoso o ferrofluido se torna. Portanto ferrofluidos atuais têm a viscosidade variando de 10^{-3} Pa s a 10^2 Pa s [18, 19, 45, 43, 44]. Nós escolhemos um ferrofluido de alta viscosidade com $\eta_0 = 10^2$ Pa s. Utilizando esse conjunto de grandezas físicas nós obtemos os seguintes parâmetros adimensionais: $N_B = 5.0 \times 10^{-5}$, $N_N = 2.5 \times 10^3$, e $\gamma = 10^2$. Note que sob tais circunstâncias $N_N \gg N_B$, o que significa que a contribuição não-newtoniana é de maior impacto no nosso problema. O intervalo de valores que tomamos para o parâmetro de cisalhamento adimensional ($0 \leq \xi \leq 50$) também está de acordo aqueles utilizados nas Refs. [28, 29, 30, 33, 34].

2.4.1 Limite de cisalhamento nulo

Prosseguimos examinando a Fig. 2.5 que representa curvas da força de adesão em função da distância entre as placas do teste de *probe-tack* com um ferrofluido não-newtoniano no limite de cisalhamento nulo ($\xi \rightarrow 0$). Tomando esse limite nós nos focamos exclusivamente na influência da formação de cadeias de partículas magnéticas sobre a força adesiva. Curvas típicas de força-distância crescem abruptamente em estágios iniciais da separação das placas [4, 6, 5, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13]. Para um fluido viscoso newtoniano não existe razão física aparente para que a força de fato comece sendo nula, atinja rapidamente um pico e depois decresça rapidamente. No entanto, esse comportamento pode ser descrito como resultado da elasticidade intrínseca do aparato de *probe-tack* [4, 5], e levando em conta essa contribuição (*compliant apparatus situation*) calculamos a forma completa das curvas de força-distância do problema. Para tanto nós seguimos as Refs. [4, 5, 11] e assumimos que durante todo o processo de levantamento das placas há um balanço perfeito entre as forças ferrohodinâmicas e a força elástica restauradora (adimensional) $L - b$, que resulta da deformação do aparato. Usando a Eq. (2.15) e a relação $L = b_0 + t$ podemos escrever $\dot{b} = db/dL$ de modo que

$$F(b, \dot{b}) = L - b. \quad (2.16)$$

Essa equação diferencial não linear é resolvida numericamente para $b(L)$ e nós achamos as curvas de força-distância a partir de $F = L - b(L)$.

A Figura 2.5 ilustra as curvas de força-distância no caso em que não há formação de cadeias ($\lambda_2 = 0$, curva preta) e nos caso em que as cadeias são formada ($\lambda_2 = 0.5$ e $\lambda_2 = 0.8$, curvas cinza-escuro e claro respectivamente). Elas são mostradas levando em conta um espaçamento inicial característico $b_0 = 1.5$. A finalidade mais importante da Fig. 2.5 é mostrar o papel da formação das cadeias na determinação do comportamento adesivo ao variar λ_2 . Quando λ_2 varia de zero (curva preta) a 0.5 (curva cinza-escuro) a força de adesão é significativamente reduzida devido somente à formação das cadeias. Na verdade há uma queda de 80% entre o máximo da curva adesiva de $\lambda_2 = 0$ para o máximo daquela que possui $\lambda_2 = 0.5$. Entretanto, se continuamos a aumentar o valor de λ_2 ($0.5 < \lambda_2 < 1$) vemos acontecer o efeito oposto, de modo que a adesão cresce e eventualmente as curvas adesivas tendem àquela descrita pelo caso

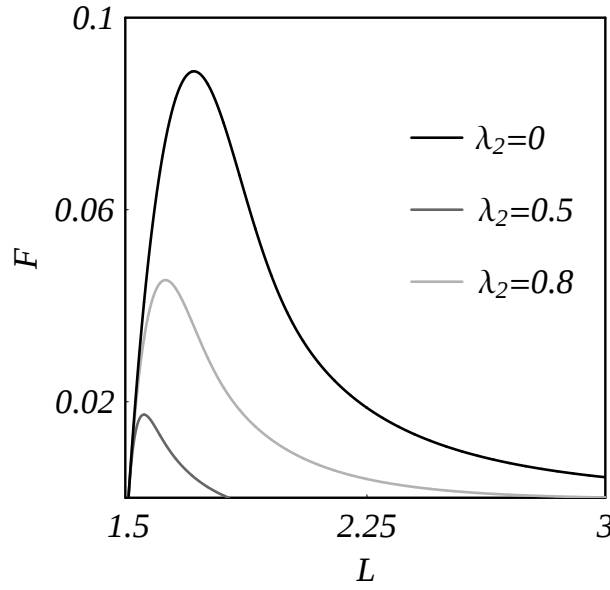


Figura 2.5 Força de adesão F em função do espaçamento L para o caso de aparato elástico e cisalhamento nulo, com separação inicial entre as placas $b_0 = 1.5$. O rótulo de cores refere-se a valores distintos de λ_2 : 0 (curva preta), 0.5 (curva cinza-escuro), and 0.8 (curva cinza-claro).

em que não há formação de cadeias (curva preta). O aumento na força de adesão é ilustrado pela curva cinza-claro para $\lambda_2 = 0.8$, que é desviada por um fator de 65% da curva preta. Note que na verdade duas curvas estão representadas pela curva preta, a curva para $\lambda_2 = 0$ e $\lambda_2 = 1$, que simplesmente se sobrepõem. O motivo físico dessa equivalência deve-se somente ao fato de que nesta geometria o valor $\lambda_2 = 1$ faz com que os efeitos não-newtonianos de torque e alinhamento das cadeias, que competem entre si, sejam iguais, provocando uma contribuição magnética para viscosidade efetivamente nula. Portanto, a situação de cisalhamento nulo é caracterizada por um deslocamento de descida e subida dos picos das curvas adesivas quando λ_2 varia de 0 a 1, o que pode ser contemplado em maior detalhe na Fig. 2.6. Esses resultados indicam diferenças de comportamento reais e potencialmente observáveis devido ao efeito de formação de cadeias, já que uma diferença nas forças de pelo menos 20% é experimentalmente detectável por instrumentos atuais de medida [50]. Nesse contexto nosso teste de *probe-tack* modificado poderia funcionar como uma ferramenta útil para detectar a presença de cadeias de partículas magnéticas em ferrofluidos. Através desse experimento também poderíamos estimar

o tamanho aproximado de tais estruturas.

Uma explicação física para o fenômeno ilustrado na Fig. 2.5 pode ser atribuída à contribuição magneto-viscosa discutida na Fig. 2.4. No limite de cisalhamento nulo os coeficientes Γ e Λ que aparecem no terceiro termo do lado direito da Eq. (2.15) são independentes de λ_2 , significando que todo o efeito da formação das cadeias vem exclusivamente do termo magneto-viscoso produzido pelo termo multiplicado por N_N na Eq. (2.15). Como mencionado anteriormente nesse trabalho, se $\xi = 0$ a contribuição magneto-viscosa se reduz a uma função parabólica de λ_2 de modo que ela decresce (cresce) se $\lambda_2 < 0.5$ ($\lambda_2 > 0.5$). Isso justifica o comportamento mostrado na Fig. 2.5 na qual a força adesiva decresce para $\lambda_2 < 0.5$ e cresce no restante do intervalo. Ressaltamos que esse tipo de argumento também é válido para o caso de cisalhamento não-nulo, como será discutido na Sec. 2.4.2. O comportamento parabólico mencionado acima fica ainda mais claro na Fig. 2.6 que plota o valor máximo da força de adesão (F_{max}) em função de λ_2 para três valores distintos de b_0 . Também fica evidente que ao mudar b_0 nenhuma mudança qualitativa é observada.

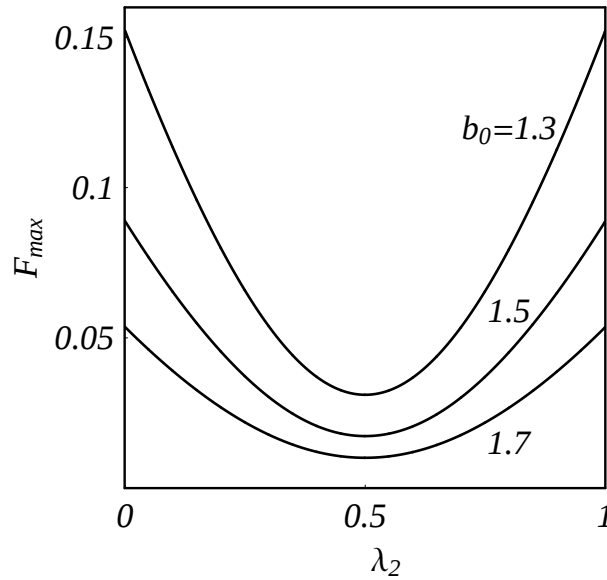


Figura 2.6 O valor máximo da força de adesão F_{max} em função de λ_2 , no limite de cisalhamento nulo, para três valores de b_0 : 1.3, 1.5, e 1.7.

2.4.2 Situação de cisalhamento finito

Agora nos voltamos para o caso de cisalhamento não-nulo e discutimos seu papel na força de adesão. De maneira rigorosa o cisalhamento adimensional é dado por $\xi = \dot{b}(L)/b(L)$, sendo obviamente um parâmetro não-nulo e que varia com L , um fato que introduz algumas dificuldades numéricas na solução da equação diferencial (2.16). No entanto através de vários testes numéricos nós checamos que ξ pode ser considerado finito e constante na resolução da Eq. (2.16), sem perda de comportamento qualitativo e quantitativo da solução, contanto que o cisalhamento não seja muito alto ($\xi \leq 50$). Essa suposição simplifica as soluções da Eq. (2.16) e é consistente com os valores típicos da taxa de cisalhamento dimensional usada em estudos anteriores [33, 34]. A ação de ξ no pico da força de adesão (F_{max}) é ilustrado na Fig. 2.7 para $0 \leq \lambda_2 \leq 1$ e diferentes valores de ξ : 0, 2, 12, e 50. Para cisalhamento nulo, como comentado anteriormente, a contribuição magneto-viscosa varia parabolicamente com λ_2 , fazendo com que F_{max} primeiramente decresça ($\lambda_2 < 0.5$) e posteriormente aumente ($\lambda_2 > 0.5$) de volta ao valor correspondente ao caso sem formação de cadeias. Em geral o comportamento dos picos resulta da competição entre a contribuição magneto-viscosa para a força de adesão (segundo termo do lado direito da Eq. (2.15)) e o termo proporcional a N_B na Eq. (2.15). Note que o termo magneto-viscoso tende a diminuir a força de adesão enquanto o outro termo tende a aumentá-la. Como $N_N \gg N_B$ a contribuição magneto-viscosa é dominante.

A partir da Fig. 2.7 pode-se notar também que para valores não-nulos do cisalhamento a simetria parabólica com respeito a λ_2 é quebrada. Para $\lambda_2 < 0.5$ o valor de F_{max} sempre aumenta com ξ , consistentemente com a assinatura *shear-thinning* da viscosidade magnética η_m . Por outro lado, para um dado $\lambda_2 \geq 0.5$ e valores crescentes do cisalhamento F_{max} primeiro decresce, atinge um mínimo e depois cresce. Esse comportamento acontece devido à transição de um regime de comportamento *shear-thickening* para *shear-thinning*, que é similar ao que foi obtido na Fig. 2.4. Isso resulta da prevalência da contribuição magneto-viscosa para a força de adesão. Se valores suficientemente grandes de cisalhamento são considerados a magnitude de F_{max} tenderá ao caso sem formação de cadeias. Isso ocorre porque altos valores de cisalhamento fragmentam as cadeias, eliminando todas as contribuições magnéticas.

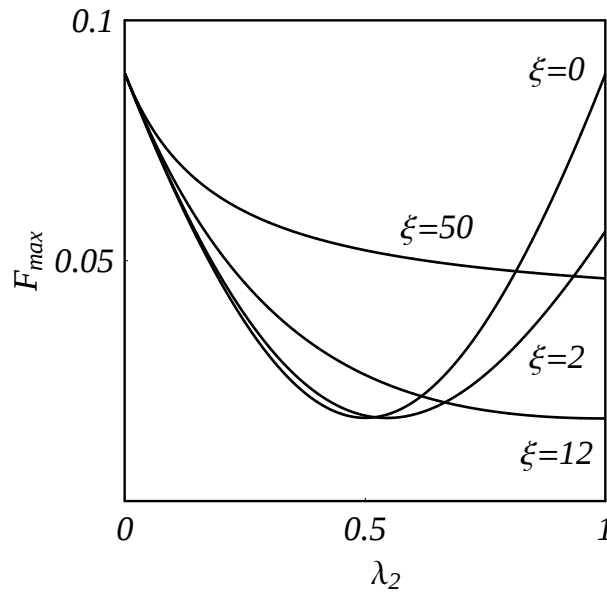


Figura 2.7 O valor máximo da força de adesão F_{max} em função de λ_2 para $b_0 = 1.5$, e diferentes valores de ξ : 0, 2, 12, e 50.

Outras ilustrações sobre a ação do cisalhamento nas curvas de força-distância podem ser vistas na Fig. 2.8 que mostra F em função de L para dois valores diferentes de ξ : (a) 2, e (b) 12, com $b_0 = 1.5$. Essas curvas devem ser contrastadas com aquelas que aparecem na Fig. 2.5 que se referem ao caso de cisalhamento nulo ($\xi = 0$) e o mesmo valor de b_0 . Se o cisalhamento é finito e relativamente pequeno ($\xi = 2$) notamos na Fig. 2.8(a) que a força de adesão para a curva cinza-claro é claramente menor que a força adesiva correspondente para o caso de cisalhamento nulo ilustrado em Fig. 2.5. De maneira inversa, a curva cinza-escuro é levemente desviada para valores maiores. Apesar do fato de que o mínimo valor do pico da força de adesão não é mais em $\lambda_2 = 0.5$, o movimento geral de descida e subida dos picos ainda é similar ao correspondente no caso de cisalhamento nulo. Essas informações podem ser checadas de acordo com os dados mostrados na Fig. 2.7.

Por outro lado, para valores maiores de cisalhamento ($\xi = 12$), como mostrado na Fig. 2.8(b), a queda na força é ainda mais intensa para a curva cinza-claro, de modo que agora ela se situa abaixo da curva cinza-escuro. Note que o pico da força de adesão dessa curva ($\lambda_2 = 0.5$) é

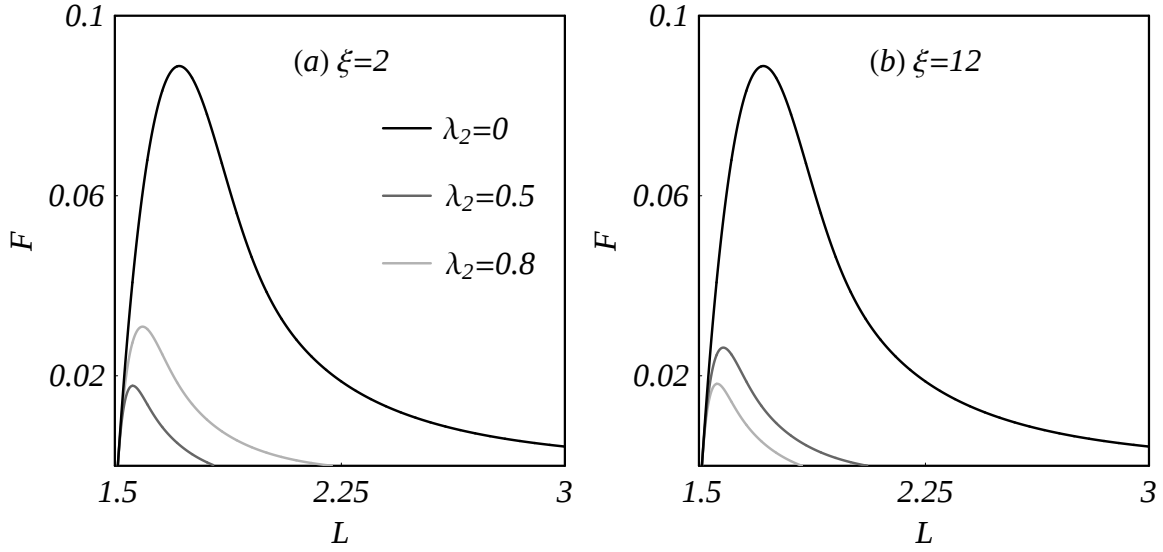


Figura 2.8 Força de adesão F para o caso de aparato elástico e cisalhamento não-nulo, em função do espaçamento L , para $b_0 = 1.5$, (a) $\xi = 2$, (b) $\xi = 12$. O rótulo de cores é o mesmo utilizado na Fig. 2.5.

maior que a posição equivalente mostrada na Fig. 2.8(a). Essa última característica também está de acordo com nossa discussão da Fig. 2.7. Aqui, diferentemente do caso de $\xi = 2$, o movimento de descida e subida dos picos não ocorre de modo que ao aumentar λ_2 os máximos da força de adesão decrescem monotonicamente. Já que na Fig. 2.8 a posição relativa das curvas cinzas são revertidas quando o cisalhamento é aumentado, é evidente que pode-se observar comportamentos distintos para F dependendo do regime de cisalhamento considerado (alto ou baixo). Também é claro que se a taxa de cisalhamento aumenta ainda mais, as duas curvas cinza tendem a se sobrepor e coincidir com a curva preta ($\lambda_2 = 0$), devido à fragmentação das cadeias.

***Yield stress* em fluidos magneto-reológicos**

3.1 Propriedades básicas de fluidos magneto-reológicos



Figura 3.1 Ilustração esquemática da formação de longas cadeias e colunas de partículas num fluido MR a partir da aplicação de um campo magnético externo. As estruturas formadas exercem uma força de sustentação efetiva que resulta na propriedade de *yield stress*. Figura adaptada da Ref. [51].

Como foi demonstrado no Cap. 2, tanto ferrofluidos newtonianos [11] quanto não-newtonianos [26] apresentam propriedades adesivas induzidas por campos magnéticos aplicados que indicam uma possível aplicação destes materiais como adesivos inteligentes. No entanto, efeitos-chave responsáveis pela aderência de adesivos ordinários, tais como viscoelasticidade e plasticidade, parecem não serem expressivos nesses fluidos magnéticos. A inclusão desses efeitos é muito importante para produzir um adesivo robusto e resistente ao cisalhamento, capaz de aumentar consideravelmente a força de adesão entre superfícies. A presença de propriedades viscoelásticas como o chamado *yield stress* em ferrofluidos, bem como sua dependência com o campo magnético aplicado, tem sido recentemente investigadas experimentalmente [52, 53]. Note que, ao contrário do que acontece com fluidos newtonianos, fluidos que apresentam *yield stress* [54] podem suportar estresse de cisalhamento sem escoar. Contanto que o estresse

permaneça abaixo de um certo valor crítico eles não escoam, mas respondem elasticamente à deformação. Foi mostrado que nos ferrofluidos não-newtonianos o *yield stress* é proporcional ao quadrado da magnitude do campo magnético aplicado. Entretanto, também se descobriu que o *yield stress* nesses casos é muito pequeno ($O(10^{-2} \text{ Pa} - 10^{-1} \text{ Pa})$), e portanto não devemos esperar uma mudança muito expressiva nas propriedades do *yield stress* presente em ferrofluidos através da aplicação de um campo magnético externo.

Diferente dos ferrofluidos, que apresentam partículas com diâmetro de alguns nanômetros, os fluidos magneto-reológicos (MR) consistem tipicamente de partículas magnetizadas do tamanho de alguns micrômetros, dispersas em um líquido carreador aquoso ou orgânico. A característica única desse tipo de fluido magnético é a mudança abrupta em suas propriedades viscoelásticas devido à aplicação de um campo magnético externo [20, 55, 56, 57, 58]. As mudanças são significativas [$O(10^5 - 10^6)$], ocorrem em alguns milissegundos e são quase completamente reversíveis. Na ausência de um campo aplicado (“*off state*”) as partículas magnetizadas na suspensão são distribuídas aleatoriamente, de modo que o fluido MR aparenta ser similar a tintas líquidas, exibindo níveis comparáveis de viscosidade aparente. Quando o campo magnético é aplicado (“*on state*”) as partículas suspensas no fluido interagem entre si, tendem a alinhar-se na direção do campo aplicado e aglomerar-se, criando longas cadeias, colunas e outras estruturas mais complexas (veja a Fig 3.1). A formação de tais estruturas restringe o movimento do fluido, fazendo com que ele apresente um comportamento típico de sólidos.

A eficiência de um fluido MR pode ser quantificada pelo seu *yield stress*, que mede a força das estruturas formadas pela indução do campo magnético. O efeito do *yield stress* aumenta com a magnitude do campo magnético aplicado e está associado ao maior valor da tensão (para a qual nenhum escoamento é observado) necessária para quebrar a rede de interações magnéticas. Nesse sentido, fluidos MR funcionam com materiais líquidos inteligentes cujas propriedades viscoelásticas podem ser convenientemente ajustadas pela aplicação de um campo magnético. Isso sugere que o potencial uso de campos magnéticos externos para produzir mudanças controláveis no desempenho adesivo e rigidez estrutural de fluidos magnéticos (originalmente proposto nas Refs. [11, 26]) ainda não foi esgotado. No caso de fluidos MR essa possibilidade foi recentemente investigada por um grupo experimental do MIT liderado por

Hosoi e McKinley [59], que conduziu experimentos do tipo *probe-tack* utilizando um fluido MR submetido a um campo magnético não-homogêneo, produzido por um pequeno magneto cilíndrico. Os experimentos deles revelaram diferenças de ordens de grandeza nas propriedades adesivas do fluido MR quando o campo é ligado. Também foi descoberto que o *yield stress* depende quadraticamente da magnitude do campo aplicado. Apesar dessas notícias promissoras, um estudo teórico sistemático do fenômeno adesivo em fluidos MR confinados sob um teste do tipo *probe-tack* ainda precisa ser feito. Esse é o propósito principal deste capítulo.

3.2 Adesão em fluidos magneto-reológicos: formulação do problema

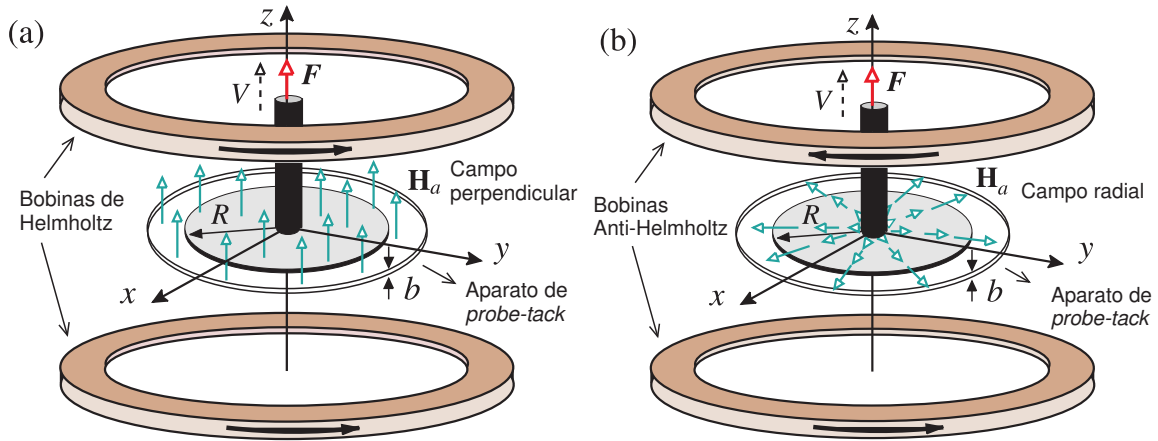


Figura 3.2 Representação esquemática do aparato de *probe-tack*, onde uma gota circular de fluido MR de raio R e espessura b está confinada entre duas placas paralelas e é submetida a uma configuração de campo magnético (a) perpendicular e (b) radial. A direção das correntes elétricas fluindo nas bobinas também é indicada. A placa superior é levantada a uma velocidade constante V através da aplicação de uma força F . A placa inferior permanece em repouso, localizada no plano que fica no meio das bobinas (plano $x - y$).

A partir deste ponto e até o fim desse capítulo estaremos tratando dos resultados expostos no nosso trabalho publicado na Ref. [27]. A figura 3.2 esboça a geometria do sistema abordado. Nós consideramos um fluido MR confinado entre duas placas circulares estreitamente

espaçadas, assim como a configuração mostrada no Cap. 2. Uma das extremidades do aparato de levantamento, aquela conectada à placa superior, se move a uma velocidade específica V , submetendo essa placa a uma força de levantamento $\mathbf{F} = F \hat{\mathbf{z}}$, onde $\hat{\mathbf{z}}$ é o vetor unitário ao longo do eixo- z . Nós consideramos que o aparato possui uma alta constante elástica k , de modo que pode ser considerado como rígido, e que a placa inferior é mantida fixa em $z = 0$. O espaçamento inicial entre as placas é representado por b_0 e o raio inicial da gota de fluido é denotado por R_0 . Para um dado tempo t o espaçamento entre as placas é dado por $b = b_0 + Vt$, onde $V = \dot{b} = db/dt$.

O fluido MR confinado é submetido a duas configurações distintas de campo magnético (Fig. 3.2), ambas produzidas por um par de bobinas por onde passam correntes de modo que o campo aplicado resultante é: (a) uniforme e perpendicular, ou (b) radialmente crescente e coplanar com a placa inferior. As bobinas são montadas de modo que são paralelas e coaxiais com as placas. Note que essas duas configurações distintas de campo magnético podem ser convenientemente obtidas utilizando um único arranjo de bobinas magnéticas, sendo a única diferença a direção relativa das correntes elétricas.

Nosso propósito, mais uma vez, é calcular analiticamente a força de levantamento F em função do deslocamento da placa superior b , levando em consideração a natureza viscoelástica e magnética do fluido MR através de seu *yield stress*. Como mostrado na Ref. [5] a elasticidade do aparato de levantamento pode ser seguramente negligenciada. Além disso nós seguimos as Refs. [5, 6, 7, 8, 9, 11, 60, 61] e derivamos F assumindo que a interface do fluido MR permanece circular durante todo o processo de levantamento, com um raio dependente do tempo denotado por $R = R(t)$. A conservação do volume do fluido nos leva à relação $R^2 b = R_0^2 b_0$.

Utilizando a aproximação de lubrificação, onde a distância b entre as placas é muito menor que o raio R da gota de fluido, e negligenciando efeitos inerciais, uma lei de Darcy adaptada para fluidos com *yield stress* pode ser escrita como [15, 16, 62, 63]

$$\frac{dp}{dr} = \frac{2\sigma_y}{b} [1 + f(\dot{\epsilon})], \quad (3.1)$$

onde p é a média transversal da pressão hidrodinâmica, σ_y é o *yield stress*, $\dot{\epsilon} \sim V/b$ denota a taxa de cisalhamento, e a função $f(\dot{\epsilon})$ inclui contribuições viscosas e tende a zero quando $\dot{\epsilon} \rightarrow 0$.

Ao assumir um regime de baixo cisalhamento, levando em consideração a contribuição de forças magnéticas e a existência de um *yield stress* dependente do campo magnético $\sigma_y = \sigma_y(H)$, nós reescrevemos Eq. (3.1) como uma lei de Darcy modificada para fluidos MR confinados

$$\frac{d\Pi}{dr} = \frac{2\sigma_y(H)}{b}, \quad (3.2)$$

onde

$$\Pi = \frac{1}{b} \int_0^b [P - \Psi] dz = p - \psi \quad (3.3)$$

é a média transversal de uma pressão generalizada, na qual

$$\Psi = \mu_0 \int_0^H M dH \quad (3.4)$$

denota uma pressão magnética, onde μ_0 denota a permeabilidade magnética do vácuo e M é a magnetização do fluido MR. Nesse contexto, a densidade de força magnética atuando no fluido MR é dada por $\mu_0 M \nabla H$ [18, 19], da mesma maneira indicada pela Eq. (2.2), onde H é o campo magnético local. A substituição de p pela pressão generalizada Π também é um procedimento padrão no estudo de problemas envolvendo fluidos magnéticos confinados [39, 40] e sua derivação é análoga à Eq. (2.3).

Ao comparar a Eq. (3.2), que descreve fluidos MR, com a Eq. (2.3), que descreve ferrofluidos, notamos que em ambas estão presentes termos de pressão hidrodinâmica e densidade de força magnética (representadas pela pressão generalizada Π). No entanto, termos viscosos proporcionais à velocidade foram eliminados da Eq. (3.2) graças ao limite de baixo cisalhamento, e em seu lugar surgiu o termo predominante de *yield stress* (representado por σ_y) que não estava presente na Eq. (2.3). O regime de cisalhamento baixo ($\dot{\epsilon} \rightarrow 0$) é justificado pelo fato de que nos experimentos do tipo *probe-tack* $\dot{\epsilon}$ é usualmente muito baixo [5, 6, 7, 8], ou seja, a velocidade de separação das placas é pequena ($V = 10^{-7} - 10^{-6}$ m/s).

Com base nas descobertas experimentais das Refs. [59, 52, 53] e de acordo com os modelos teóricos discutidos nas Refs. [20, 57, 58], nós assumimos a seguinte relação entre o *yield stress* e o campo magnético local H

$$\sigma_y(H) = \sigma_{y0} + \alpha H^2, \quad (3.5)$$

onde σ_{y0} representa o *yield stress* na ausência do campo magnético e α é uma constante que depende das propriedades materiais do fluido MR, sendo proporcional à fração volumétrica das partículas magnéticas do fluido [58]. Em geral a dependência constitutiva do *yield stress* com o campo, tanto em modelos teóricos como experimentais, é reproduzida por uma lei de potência $\sigma_y(H) \sim H^n$ com $1 \leq n \leq 2$. No caso que consideramos aqui, $n = 2$ é o valor do expoente para o qual a magnetização é linearmente relacionada ao campo magnético aplicado [20, 57, 58] $\mathbf{M} = \chi \mathbf{H}_a$, onde χ é a susceptibilidade magnética. Essa relação linear é válida contanto que $H_a \ll H_{sat}$, onde H_{sat} é a magnitude do campo aplicado necessária para atingir a magnetização de saturação ($O(10^2 \text{ kA/m} - 10^3 \text{ kA/m})$).

O campo magnético local pode ser expandido de modo a incluir tanto contribuições do campo aplicado como do campo de demagnetização. O campo de demagnetização é aquele produzido pelas cargas magnéticas superficiais induzidas devido à magnetização resultante apenas do campo aplicado. Nós consideramos apenas o efeito de mais baixa ordem das interações magnéticas [64]. Portanto, na situação de campo perpendicular nós incluímos o campo de demagnetização produzido pela magnetização uniforme resultante do campo aplicado. No entanto, no caso de campo radial nós consideramos apenas a ação do campo aplicado, negligenciando efeitos de demagnetização. Apesar da similaridade dessas considerações com aquelas tomadas para o caso de ferrofluidos [11] nós enfatizamos que a forma da lei de Darcy dada pela Eq. (3.2) e a existência de um significativo *yield stress* dependente do campo magnético como o expresso na Eq. (3.5) são características únicas de fluidos MR.

3.3 Cálculo da força de adesão

A força exercida pelo aparato de levantamento na placa superior é calculada através da integração da diferença de pressão hidrodinâmica acima e abaixo dela [11, 26], e nos leva a

$$F = \int_0^R 2\pi r dr \left\{ [\Pi(R) - \Pi(r)] + [\Psi(R) - \Psi(r)] + \frac{1}{2} \mu_0 [M_r^2(R) - M_z^2(r)] \right\}, \quad (3.6)$$

que representa equação semelhante à Eq. (2.14), apenas reescrita de forma mais conveniente para tratar o caso de fluidos MR. Note que o primeiro termo dentro das chaves é diretamente calculado pela integral da Eq. (3.2). No entanto, os termos $M_r(R)$ e $M_z(r)$ denotam a componente normal da magnetização tomada nos limites $r = R$ e $z = b$ respectivamente. Esses termos advêm de uma relação análoga à Eq. (2.12), que estabelece a condição de contorno da descontinuidade da pressão [19, 18]

$$\Delta p = \sigma \kappa - \frac{1}{2} \mu_0 M_n^2, \quad (3.7)$$

onde desprezaremos mais adiante efeitos de tensão superficial, como nas Refs. [5, 8]. Na Eq. (3.7), M_n representa a componente da magnetização normal aos contornos do fluido.

Nas próximas seções nós calculamos expressões fechadas para a força de adesão dada pela Eq. (3.6), considerando que o campo magnético aplicado é perpendicular ou radial. Ao apresentar nossos resultados, nós nos certificamos de que os valores de todos os parâmetros adimensionais relevantes utilizados são consistentes com parâmetros físicos realistas, relacionados aos aparatos de *probe-tack*, arranjos de campo magnético e propriedades magnéticas de fluidos MR existentes. Para parâmetros típicos relacionados a experimentos de *probe-tack* nós usamos [5, 6, 7, 8]: $k = 5.0 \times 10^5$ N/m, $R_0 = 10^{-2}$ m, $b_0 = 10^{-4} - 10^{-3}$ m, e $V = 10^{-7} - 10^{-6}$ m/s. Com respeito a intensidade do campo magnético, nós consideramos valores relativamente baixos $5 \text{ kA/m} \leq H_0 \leq 30 \text{ kA/m}$, que são facilmente obtidos usando uma montagem usual de bobinas de Helmholtz, onde o raio da bobina é consideravelmente maior que o raio da gota de fluido. O tamanho característico L relacionado à configuração de campo magnético é da ordem de alguns centímetros [70]. Vale a pena ressaltar que as dimensões das placas de aparatos de *probe-tack* reais e o tamanho das bobinas magnéticas são compatíveis. Com relação às propriedades materiais do fluido MR nós tomamos $\alpha = 3.0 \times 10^{-7} \text{ N/A}^2$ [59, 52], e consideramos que o *yield stress* na ausência de campo σ_{y0} varia de 3 Pa a 45 Pa [59, 65]. Finalmente, para os valores da susceptibilidade nós usamos $0.1 \leq \chi \leq 1$ [66].

3.3.1 Campo magnético perpendicular

Primeiramente nós consideramos o caso de campo perpendicular no qual um campo magnético uniforme

$$\mathbf{H}_a = H_0 \hat{\mathbf{z}} \quad (3.8)$$

é aplicado de maneira normal às placas do aparato de *probe-tack*. Num laboratório essa configuração de campo perpendicular pode ser gerada por um par de bobinas de Helmholtz cujas correntes elétricas possuem a mesma magnitude e fluem na mesma direção. Em consequência da sua implementação relativamente simples, o arranjo de campo perpendicular tem sido amplamente utilizado para investigar tanto experimentalmente quanto teoricamente vários aspectos da física por trás de fluidos magnéticos complexos.

Devido aos efeitos de demagnetização [18, 19] a uniformidade do campo magnético perpendicular é distorcida dentro da amostra de fluido MR. Nossos cálculos levam em conta esses importantes efeitos de maneira explícita. Utilizando a Eq. (3.4) e considerando que o campo magnético local difere do campo aplicado por um campo de demagnetização dependente do formato da gota de fluido de maneira que $\mathbf{H} = \mathbf{H}_a + \mathbf{H}_d$, onde $\mathbf{H}_d = -\nabla\phi$, a pressão magnética para o campo perpendicular pode ser obtida. O potencial magnético ϕ se origina de cargas magnéticas induzidas ao longo das superfícies circulares no topo e base do domínio de fluido MR, e é equivalente ao potencial calculado para um capacitor de placas paralelas [38].

Utilizando as Eqs. (3.3) e (3.4) podemos descrever a interface do fluido MR por uma curva simples fechada C parametrizada pelo comprimento de arco s , e reescrever a pressão magnética como [11, 39, 40]

$$\begin{aligned} \psi_{\perp} = & \frac{\mu_0 M^2}{2\pi b} \left\{ \oint_C ds' \hat{\mathbf{D}} \times \hat{\mathbf{t}}(s') \right. \\ & \left. + \oint_C dx' \ln \left[(y - y') + \sqrt{D^2 + b^2} \right] \right\}, \end{aligned} \quad (3.9)$$

onde $x = x(s)$, $x' = x(s')$, etc., $\hat{\mathbf{t}}(s')$ é o vetor unitário tangente a C no comprimento de arco s' , e $\hat{\mathbf{D}} = \mathbf{D}/D$ é o vetor diferença unitário apontando do ponto $\mathbf{r} = (x, y)$ para o ponto $\mathbf{r}' = (x', y')$.

Substituindo a Eq. (3.9) na Eq. (3.6) temos como resultado uma força de adesão *adimensional*

$$F_{\perp} = \frac{1}{b^{5/2}} \left\{ 1 + N_N^{\perp} \left[1 - \frac{24\chi\beta}{\pi b^{3/2}} \int_0^1 u du \int_u^1 \mathcal{J}(u') du' \right] \right\} - N_B^{\perp} \frac{\chi^2}{b} \left[\frac{\pi}{2} - \frac{4\beta}{b^{3/2}} \left(\int_0^1 \mathcal{J}(u) u du - \frac{1}{2} \mathcal{J}(1) \right) \right], \quad (3.10)$$

onde

$$\begin{aligned} \mathcal{J}(u) = & \int_0^{\pi/2} \left(\frac{1 - u + 2u \sin^2 \omega}{\sqrt{(1 - u)^2 + 4u \sin^2 \omega}} \right) d\omega \\ & + \frac{1}{2} \int_0^{\pi} \ln \left[\sqrt{1 + (1 - u)^2 \frac{R^2}{b^2} + 4 \frac{R^2}{b^2} u \sin^2 \omega} \right. \\ & \left. - \frac{R}{b} \sin 2\omega \right] \sin 2\omega d\omega. \end{aligned} \quad (3.11)$$

$N_B^{\perp} = (\mu_0 H_0^2 R_0^2 b_0) / k \zeta^2$ é um parâmetro adimensional magnético para a configuração de campo perpendicular, $N_N^{\perp} = \alpha H_0^2 / \sigma_{y0}$ é um parâmetro adimensional não-newtoniano que mede a força relativa do *yield stress* induzido magneticamente com respeito ao *yield stress* na ausência de campo (“*off state*”). O parâmetro $\beta = (b_0^{1/2} R_0) / \zeta^{3/2}$ é um fator geométrico adimensional relacionado ao campo de demagnetização. Note que a força de adesão obtida na Eq. (3.10) foi rescalada por $k \zeta = (2\pi \sigma_{y0} R_0^3 b_0^{3/2}) / 3 \zeta^{5/2}$, e comprimentos foram rescalados por ζ . Essa escolha aparentemente complexa de escalas adimensionais foi originalmente introduzida no trabalho de Derks *et al.* [5], onde o fenômeno da adesão em fluidos não-magnéticos foi estudado tanto experimentalmente quanto teoricamente. Por consistência e também para uma conexão mais direta com as Refs. [5, 11, 26] nós adotamos a mesma adimensionalização. Nós enfatizamos o fato de que nossa expressão para força de adesão (3.10) está de acordo com a expressão equivalente obtida nas Refs. [5, 16] que abordam o caso consideravelmente mais simples no qual o fluido que apresenta *yield stress* é não-magnético ($N_B^{\perp} = N_N^{\perp} = 0$).

A figura 3.3 plota as curvas de força-distância para o caso de campo magnético perpendicular, assumindo que $\beta = 3.16 \times 10^3$, $b_0 = 10$, $\chi = 0.1$. A figura 3.3(a) considera um valor fixo de $N_B^{\perp} = 0.15$ e três valores diferentes de $N_N^{\perp}$: 62.50 (curva cinza-claro), 31.25 (curva

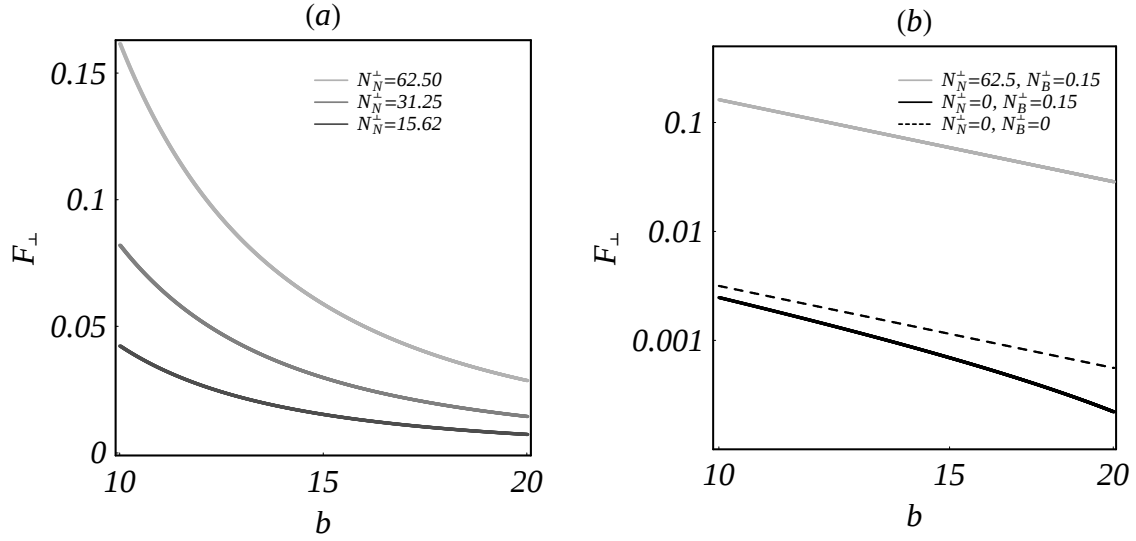


Figura 3.3 Força de adesão para o caso de campo perpendicular $F_{\perp}$ em função do espaçamento b , para (a) $N_B^{\perp} = 0.15$ e três valores de $N_N^{\perp}$; e (b) contrastando o caso de campo aplicado nulo (curva tracejada) com aqueles que assumem a ação do campo perpendicular, para um fluido MR que apresenta *yield stress* independente do campo (curva preta contínua) e dependente do campo magnético (curva cinza contínua). Assumimos que $\beta = 3.16 \times 10^3$, $b_0 = 10$, e $\chi = 0.1$.

cinza-médio), 15.62 (curva cinza escuro). Como esperado, ao inspecionar a Fig. 3.3(a) nós verificamos que para um valor fixo de $N_B^{\perp}$ a força de adesão se torna ainda maior para crescentes valores do parâmetro não-newtoniano $N_N^{\perp}$. Lembre-se que, na prática, a magnitude de $N_N^{\perp}$ pode ser ajustada através da variação da intensidade do campo magnético aplicado (H_0) ou através da manipulação das propriedades magnéticas do fluido MR, alterando o parâmetro (α) (ao mudar por exemplo a fração volumétrica das partículas do fluido). Esse é exatamente o tipo de mecanismo de controle que pode ser usado tanto para intensificar quanto para diminuir o desempenho adesivo do fluido MR através de meios magnéticos.

Um gráfico log-log das curvas de força-distância é apresentado na Fig. 3.3(b) onde o levantamento da placa superior ocorre para três situações distintas: (i) fluido MR com *yield stress* dependente do campo magnético sob influência da configuração de campo perpendicular ($N_N^{\perp} = 62.50$, $N_B^{\perp} = 0.15$, curva cinza contínua); (ii) fluido MR com *yield stress* independente

do campo sob influência do campo perpendicular ($N_N^\perp = 0$, $N_B^\perp = 0.15$, curva preta contínua), o que fisicamente representaria um fluido MR diluído de modo a possuir α negligenciável; e (iii) fluido MR na ausência de campo aplicado, ou “*off state*” ($N_N^\perp = 0$, $N_B^\perp = 0$, curva tracejada). O primeiro aspecto relevante desse sistema é o decréscimo na força de adesão devido à ação pura do campo magnético, *i. e.*, quando o *yield stress* independe do campo. Isso pode ser verificado através da observação de que a curva contínua preta localiza-se abaixo da tracejada. Nós ressaltamos que a diferença (mínima) relativa entre essas duas curvas é da ordem de 22%. Esse resultado indica uma diferença de comportamento real e potencialmente observável devido ao campo magnético, já que uma diferença nas forças de pelo menos 20% é experimentalmente detectável por instrumentos atuais de medida [50]. Esse comportamento (diminuição de $F_\perp$) para o fluido MR com *yield stress* insensível ao campo é similar ao detectado na Ref. [11] para ferrofluidos newtonianos submetidos ao campo perpendicular. Mesmo que a repulsão magnética entre os dipolos alinhados tenda a fazer com que a gota se espalhe (o que faria a força de adesão aumentar), a componente normal da magnetização agindo da placa superior tem um papel mais relevante, e o efeito resultante é uma diminuição da força adesiva.

Um cenário completamente diferente é revelado quando consideramos a situação envolvendo um fluido MR com *yield stress* dependente do campo magnético, ilustrado pela curva cinza na Fig. 3.3(b). Nesse caso podemos verificar um aumento dramático em $F_\perp$ com respeito a situação não-magnética (curva tracejada). Note que aqui o efeito devido à ação do campo magnético, que tende a diminuir $F_\perp$, é completamente obscurecido pela contribuição do *yield stress* dependente do campo. Na verdade, a força de adesão para o fluido MR com *yield stress* dependente do campo é cerca de 50 vezes maior que aquela calculada para o caso não magnético. Embora um acréscimo no valor da força de adesão quando se aumenta o *yield stress* não seja muito surpreendente, tal enorme engrandecimento induzido pelo campo não poderia ser trivialmente antecipada. Nós enfatizamos que esse é um aumento muito significativo em comparação com as respostas usuais computadas para ferrofluidos, tanto newtonianos (aumento típico de cerca de 20% – 30%) [11] como não-newtonianos (aumento de aproximadamente 80%) [26]. Essa mudança expressiva na força de adesão do material fluido é devido à formação de longas cadeias de partículas e a importante dependência de seu *yield stress* com o campo

magnético expressado na Eq. (3.5). Essas cadeias podem ser visualizadas experimentalmente com o auxílio de um microscópio óptico ou, em alguns casos, até mesmo a olho nu, enquanto teoricamente são prevista por modelos de dinâmica molecular [67]. Também vale a pena notar que uma diferença de ordem de magnitude análoga foi observada experimentalmente na Ref. [59], onde um fluido MR com *yield stress* dependente do campo é submetido a um campo magnético de um pequeno magneto.

Fechamos nossa discussão sobre o caso do campo perpendicular adicionando algumas ressalvas sobre a Fig. 3.3(b). Até esse ponto nós nos focamos na análise da magnitude da força de adesão. Agora nós comentaremos sobre a forma específica das curvas de força-distância através da sua dependência explícita em b . Começamos inspecionando a Eq. (3.10) e considerando o caso de campo aplicado nulo ($N_N^\perp = N_B^\perp = 0$), onde $F_\perp \sim b^{-5/2}$ é representado pela curva tracejada. Isso está de acordo com os resultados originalmente obtidos nas Refs. [5, 16] para fluidos não-magnéticos. Outro caso de interesse é aquele relacionado ao *yield stress* independente do campo ($N_N^\perp = 0$, $N_B^\perp \neq 0$) como é mostrado pela curva contínua preta. Sob essas circunstâncias o termo de demagnetização proporcional a β contribui para um aumento na adesão e apresenta uma dependência não trivial em b , onde um termo proporcional a $b^{-5/2}$ é multiplicado pela complexa expressão integral dada por Eq. (3.11). Por outro lado o termo restante proporcional a $N_B^\perp$ vem da parte normal da magnetização na Eq. (3.6) e escala com b^{-1} , agindo de modo a decrescer a força de adesão. Já que na Fig. 3.3(b) a curva preta contínua se situa abaixo da tracejada, nós concluímos que o termo de magnetização normal prevalece. A contribuição resultante de todos os termos proporcional a $N_B^\perp$ resulta nas seguintes escalas obtidas numericamente: $\sim b^{-2.9}$ para valores pequenos de b , e $\sim b^{-4.7}$ para valores maiores de b .

Finalmente nos voltamos ao caso de *yield stress* dependente do campo ($N_N^\perp \neq 0$, $N_B^\perp \neq 0$) relacionado à curva cinza contínua na Fig. 3.3(b). Agora o termo de demagnetização proporcional a $N_N^\perp$ e β tende a decrescer a adesão, apresentando uma dependência complexa proporcional a b^{-4} multiplicada pelo termo integral. No entanto, o termo dominante é aquele proporcional a $N_N^\perp$ e independente de β que escala com $b^{-5/2}$. Note que esse é o termo que aumenta dramaticamente a força de adesão, mas ainda mantém a mesma potência do caso em que o campo

aplicado é nulo.

3.3.2 Campo magnético radial

Recentemente, um estudo teórico [68] propôs que através da simples reversão na direção da corrente em uma das bobinas de Helmholtz (arranjo “anti-Helmholtz” [69]) podemos produzir um campo magnético não-uniforme e inovador dado por

$$\mathbf{H}_a = \frac{H_0}{L} r \hat{\mathbf{r}} \quad (3.12)$$

em $z = 0$, onde L é um comprimento característico e $\hat{\mathbf{r}}$ representa o vetor unitário ao longo da direção radial. Esse campo magnético puramente radial atua no plano médio entre as placas e sua implementação prática foi atestada experimentalmente [70]. Para essa configuração particular de campo, a pressão magnética dada pela Eq. (2.4) pode ser escrita como

$$\psi_r(r) = \frac{\mu_0 \chi H_0^2 r^2}{2L^2}. \quad (3.13)$$

Note que o campo radial aplicado naturalmente apresenta um gradiente radial, de modo que a força magnética de mais baixa ordem pode negligenciar a contribuição do campo de demagnetização.

Antes de prosseguir com o cálculo da força de adesão, vale a pena mencionar que, satisfazendo a condição tridimensional de divergência nula $\nabla \cdot \mathbf{H}_a = 0$, perto do plano $x - y$ existem componentes do campo magnético ao longo da direção radial (H_a^r) e axial (H_a^z). Sob as circunstâncias que o raio das bobinas são muito maiores que a dimensão da amostra de fluido MR, nós encontramos que

$$\frac{H_a^r}{H_a^z} = -\frac{1}{2} \frac{r}{z}. \quad (3.14)$$

Portanto, para a situação de “*large aspect ratio*” [$R(t) \gg b(t)$] que ocorre no teste de *probe-tack* podemos afirmar que $H_a^r \gg H_a^z$. Conseqüentemente, o campo aplicado pode ser considerado como sendo simplesmente radial. De fato, verificamos que a contribuição axial para a força de adesão é muito menor [$\sim 10^2 - 10^3$ vezes menor] que a contribuição radial.

Levando em conta a discussão acima e substituindo a Eq. (3.13) na Eq. (3.6) nós obtemos a força de adesão *adimensional*

$$F_r = \frac{1}{b^{5/2}} + N_N^r \frac{1}{b^{7/2}} + N_B^r \chi \left(\chi + \frac{1}{2} \right) \frac{1}{b^2}, \quad (3.15)$$

onde $N_B^r = (\pi\mu_0 H_0^2 R_0^4 b_0^2)/2k\zeta^3 L^2$ é um parâmetro adimensional magnético no caso do campo radial, e $N_N^r = (3\alpha H_0^2 R_0^2 b_0)/5\sigma_{y0}\zeta L^2$ é o parâmetro não-newtoniano. Nós enfatizamos o fato de que a força adesiva no caso do campo radial é adimensionalizada da mesma forma que no caso perpendicular.

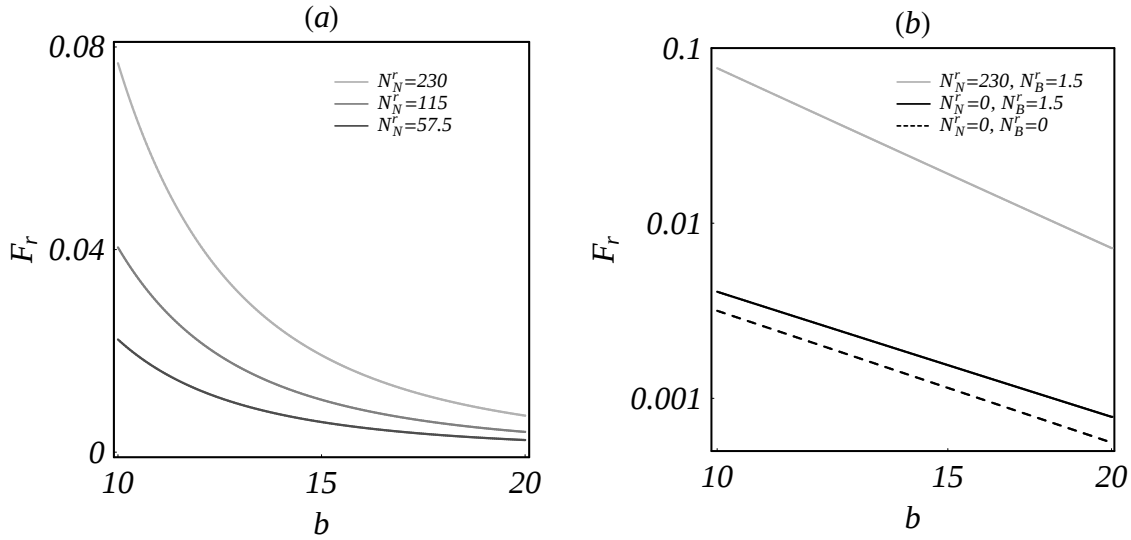


Figura 3.4 Força de adesão para o caso de campo radial F_r em função do espaçamento b , para (a) $N_B^r = 1.5$ e três valores de N_N^r ; e (b) contrastando o caso de campo aplicado nulo (curva tracejada) com aqueles que assumem a ação do campo radial para um fluido MR que apresenta *yield stress* independente do campo (curva preta contínua) e dependente do campo (curva cinza contínua). Assumimos $b_0 = 10$ e $\chi = 0.1$.

A figura 3.4 ilustra as curvas de força-distância para o caso do campo radial, assumindo que $b_0 = 10$ e $\chi = 0.1$. A figura 3.4(a) considera um valor fixo de $N_B^r = 1.5$ e três valores diferentes de N_N^r : 230 (curva cinza-claro), 115 (curva cinza-médio), e 57.5 (curva cinza-escuro). Similarmente ao que foi discutido no caso campo perpendicular [Fig. 3.3(a)], aqui observamos que aumentando o valor do parâmetro não-newtoniano N_N^r elevamos cada vez mais o valor da

força adesiva. Note que a similaridade nos comportamentos mostrados nas Figs. 3.3(a) e 3.4(a) ocorre apesar das diferenças nas propriedades de simetria desses arranjos de campo magnético.

A Figura 3.4(b) ilustra um gráfico log-log das curvas de força-distância, onde o levantamento ocorre para três situações distintas: (i) fluido MR com *yield stress* dependente do campo sob a presença de um campo magnético radial ($N_N^r = 230$, $N_B^r = 1.5$, curva cinza contínua); (ii) fluido MR com *yield stress* independente do campo sob a presença de um campo magnético radial ($N_N^r = 0$, $N_B^r = 1.5$, curva preta contínua); e (iii) fluido MR na ausência de campo magnético aplicado, ou “*off state*” ($N_N^r = 0$, $N_B^r = 0$, curva tracejada). Em contraste ao caso de campo perpendicular, na Fig. 3.4(b) notamos que a ação pura do campo radial produz um aumento de aproximadamente 28% na força de adesão em comparação com a situação não-magnética. A origem desse comportamento pode ser justificada pela existência de um gradiente ao longo da direção radial para fora, inerente ao campo aplicado, que tende a espalhar a gota de fluido e tornar o processo de levantamento das placas mais difícil.

Mais uma vez verificamos que a força de adesão é fortemente aumentada no caso do fluido MR com *yield stress* dependente do campo, como é mostrado pela curva cinza na Fig. 3.4(b). Nesse caso de campo radial a força de adesão é cerca de 23 vezes maior que aquela calculada para a situação não magnética (curva tracejada). Isso torna evidente a grande relevância da dependência do *yield stress* com o campo magnético para a determinação do comportamento adesivo de fluidos MR, tanto para o caso de campo radial quanto perpendicular.

Nós concluímos essa seção discutindo brevemente a forma específica das curvas de força-distância sob a configuração de campo magnético radial mostradas na Fig. 3.4(b). Como esperado, nós observamos a partir da Eq. (3.15) que para o caso de campo aplicado nulo ($N_N^r = N_B^r = 0$) $F_r \sim b^{-5/2}$, correspondendo à curva tracejada. Por outro lado, a contribuição do campo magnético ($N_N^r = 0, N_B^r \neq 0$) relacionada à curva contínua preta introduz uma dependência adicional de b^{-2} que é dominante para valores altos de b . Como comentado anteriormente, isso acontece devido ao gradiente intrínseco fornecido pelo campo magnético aplicado. Finalmente, desde que $N_N^r \gg N_B^r$ a consideração do *yield stress* induzido pelo campo adiciona uma modificação substancial no comportamento da força de adesão, fazendo com que ela varie de acordo com $F_r \sim b^{-7/2}$ (curva cinza contínua). Então, o *yield stress* dependente

do campo provoca uma queda mais significativa de F_r com b comparada com o caso de campo nulo. Fisicamente isso poderia ser esperado pela natureza do campo radial magnético: devido à conservação do volume, quando b é aumentado a gota se contrai e se move em direção a regiões de campo magnético menos intenso, o que leva a uma diminuição mais pronunciada no valor do *yield stress*. Note que a influência do *yield stress* dependente do campo possui duas contribuições: aumenta enormemente a magnitude de F_r , e também modifica sua dependência com b .

CAPÍTULO 4

Conclusão

Numa primeira etapa desse trabalho, exposta no Cap. 2, nós investigamos as respostas reológicas e adesivas de um ferrofluido formador de cadeias quando este encontra-se sob tensão e é submetido a um campo magnético radial aplicado. Nessa situação, nós examinamos o papel de efeitos magnéticos, de cisalhamento e de formação de cadeias na determinação da força adesiva da amostra de ferrofluido. Nossa descrição teórica é baseada numa lei de Darcy generalizada para fluidos magnéticos não-newtonianos, na qual a viscosidade total do fluido inclui um termo magneto-viscoso que acopla convenientemente o cisalhamento com as contribuições magnéticas. Um aspecto peculiar dessa viscosidade magnética é sua dependência com o tamanho das cadeias de partículas magnéticas formadas. Nós observamos que quando permitimos que o comprimento das cadeias varie, o ferrofluido não-newtoniano pode apresentar regimes de *shear-thinning* e *shear-thickening*.

A força de adesão é calculada usando a lei de Darcy, mais uma versão estendida do tensor das tensões que leva em consideração a existência de pequenas cadeias de partículas no ferrofluido. Nós estudamos as propriedades adesivas da amostra de ferrofluido sob circunstâncias de cisalhamento nulo e não-nulo. No limite de cisalhamento nulo, quando o comprimento das cadeias é aumentado, nós verificamos que o pico da força adesiva primeiro decresce, atinge um valor mínimo e depois cresce de volta para a situação usual sem cadeias.

No entanto, se o cisalhamento é finito e não-nulo, a dependência da força de adesão com o tamanho da cadeia varia com a magnitude do cisalhamento. Para pequenos valores de cisalhamento o comportamento qualitativo das curvas de força-distância é similar ao observado para o caso de cisalhamento nulo. Todavia, para valores intermediários da taxa de cisalhamento o movimento de descida e subida dos picos da força adesiva não mais ocorre. Em vez disso, os picos da força adesiva se tornam cada vez menores para valores crescentes de λ_2 . Finalmente, a uma alta taxa de cisalhamento as cadeias de partículas tendem a se romper e conseqüentemente

todas as curvas se aproximam da situação sem cadeias. Todos esses resultados indicam que testes do tipo *probe-tack* podem servir como instrumentos de comprovação da existência de cadeias em ferrofluidos, promovendo também um método adicional válido para prever o tamanho dessas estruturas.

Em suma, no Cap. 2 nós mostramos que a inclusão da formação de cadeias de partículas magnéticas em ferrofluidos enriquece consideravelmente as propriedades reológicas do sistema, levando a ocorrência de fenômenos adesivos interessantes. Nossos resultados teóricos apontam para diferenças tangíveis e potencialmente observáveis no comportamento de um ferrofluido devido à presença de cadeias, adicionando argumentos à discussão geral sobre a influência da formação de cadeias de partículas magnéticas na dinâmica de ferrofluidos.

Em seguida, no Cap. 3 deste trabalho, nós exploramos a possibilidade de um adesivo de força controlável através do estudo de um sistema *probe-tack* no qual uma amostra fluido magneto-reológico é confinado entre duas placas paralelas. A amostra se comporta como um adesivo inteligente quando submetida a um campo magnético externo que pode ser ajustado convenientemente. Utilizando uma equação bidimensional similar a lei de Darcy e considerando uma dependência explícita do *yield stress* com o campo magnético, nós fomos capazes de avaliar o desempenho adesivo do fluido MR. Duas configurações de campo magnético foram consideradas, obtidas basicamente através do mesmo arranjo de bobinas de Helmholtz, onde tanto um campo perpendicular uniforme quanto um campo radial não-uniforme podem ser gerados. Nossos cálculos analíticos indicam que para ambas as configurações de campo obtemos forças de adesão que são dramaticamente maiores que aquelas medidas nas situações usuais, nas quais efeitos da dependência do *yield stress* com o campo não são levados em conta. Enquanto ambas as configurações de campo levam a uma força de adesão elevada, nós detectamos que elas se comportam de maneira diferente com relação a sua dependência com a distância entre as placas b : se por um lado o campo perpendicular mantém a mesma lei de potência que o caso de campo nulo ($F_{\perp} \sim b^{-5/2}$), por outro lado o campo radial introduz uma lei de escala diferente onde $F_r \sim b^{-7/2}$.

Vale a pena atentar para o fato de que mecanismos de adesão aumentada magneticamente foram investigados anteriormente para ferrofluidos newtonianos [11] e não-newtonianos [26].

No entanto o aumento na força de adesão calculado nessas situações é muito modesto comparado ao aumento de ordens de grandeza que prevemos para fluidos magneto-reológicos.

Ressaltamos que nossos resultados teóricos ainda não foram verificados por experimentos. Um experimento interessante na investigação de propriedades adesivas de fluidos MR foi recentemente executado por Hosoi, McKinley e Ewoldt [59], no qual a ação de um campo magnético não-homogêneo produzido por um pequeno magneto cilíndrico foi estudada. Entretanto, considerando a relativa simplicidade do arranjo de bobinas de Helmholtz nós esperamos que pesquisadores experimentais sintam-se motivados a testar nossas previsões teóricas. É claro que nosso modelo analítico é uma tentativa inicial de obter algum *insight* sobre o potencial uso de fluidos MR como adesivos inteligentes, de modo que efeitos mais complicados como cavitação e falha por molhamento não foram considerados. Novamente, esperamos que pesquisadores teóricos estejam inclinados a adicionar essas contribuições para uma futura descrição teórica mais sofisticada do sistema.

Como perspectiva de continuação da nossa pesquisa com fluidos magnéticos, temos em vista o estudo da formação de padrões em fluidos MR confinados. Através de uma abordagem teórica semelhante àquela descrita nesta tese, investigaremos que tipos de instabilidades podem emergir nesse sistema quando levamos em consideração efeitos de *yield stress* induzidos por um campo magnético externo. Além de utilizar uma teoria de modos acoplados linear e fracamente não-linear para acessar a evolução temporal das perturbações em estágios iniciais do sistema, usaremos também um formalismo de *vortex-sheet* para obter soluções estacionárias exatas do problema, revelando características totalmente não-lineares.

APÊNDICE A

Adhesion properties of chain-forming ferrofluids

Phys. Rev. E 79, 046303 (2009)

Adhesion properties of chain-forming ferrofluids

Sérgio A. Lira and José A. Miranda*

Departamento de Física, LFTC, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, Pernambuco 50670-901, Brazil
(Received 13 November 2008; revised manuscript received 28 January 2009; published 2 April 2009)

Denser and highly magnetized ferrofluids exhibit several non-Newtonian behaviors attributed to the formation of magnetic particle chains. We investigate the rheological and adhesive properties during tensile deformation of a confined chain-forming ferrofluid subjected to a radial magnetic field. Both the magnetoviscous contribution to the viscosity and the adhesive force are derived analytically. The response of the system to changes in the length of the chains is examined under zero and nonzero shear circumstances. Our results indicate that the existence of chains has a significant impact on the adhesive strength as well as on the viscosity of the ferrofluid, allowing it to display both shear-thinning and shear-thickening regimes. These findings open up the possibility of monitoring complex rheological responses of such fluids with the assistance of applied magnetic fields, allowing a more accurate assessment of their adhesive properties.

DOI: [10.1103/PhysRevE.79.046303](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.79.046303)

PACS number(s): 47.65.Cb, 75.50.Mm, 68.35.Np, 47.20.Gv

I. INTRODUCTION

The detailed understanding of a number of adhesion processes is made difficult by the inherent complexity of adhesive materials. Typical adhesives are based on weakly cross-linked high-molecular weight polymers and present very intricate rheological properties, many of them often not fully known [1,2]. A convenient way of approaching the complicated effects in conventional soft adhesives has been recently tackled by some research groups which examined the fundamentals of adhesion in viscous fluids [3–10]. In these studies it has been demonstrated that, although fluids are not, rigorously speaking, “true” adhesives they present physical properties that are quite similar to the ones of regular soft adhesives. Initially, the simplest situation of Newtonian fluids has been considered, and then different levels of rheological complexity have been added to gain some appreciation for the fluid nature of more traditional adhesive processes.

One efficient and relatively simple method to access and characterize important adhesive properties both in conventional adhesives as well as in viscous fluids is provided by the so-called probe-tack test [11,12]. In the “plate-plate” version of this test a sample of material is first confined between two parallel plane plates, and then the upper plate is lifted at a known rate while the applied force is recorded. When the upper plate is lifted, the pressure gradient causes an inward viscous shearing flow in the plane of the adhesive or fluid film, producing a downward adhesive force normal to the upper plate. The result is a force-distance curve that quantifies the adhesive strength of the sample under tension as a function of the upper plate displacement. The debonding studies performed in Refs. [3–10] have made ample use of the probe-tack test to gain insight into the adhesive properties of viscous fluids.

Among the investigations that consider the fluid nature of adhesion, one is particularly compelling, in the sense that it addresses adhesion phenomena in magnetic fluids [10]. In

contrast to Refs. [3–9] in which the fluid under study is non-magnetic, in Ref. [10] the material is a viscous Newtonian ferrofluid subjected to an external magnetic field. Ferrofluids [13,14], which are stable colloidal suspensions of magnetic nanoparticles respond paramagnetically to applied magnetic fields. The interplay between fluid dynamic and magnetic contributions in ferrofluids leads to various interesting field-induced behaviors and pattern formation processes. It has been shown [10] that, contrary to conventional adhesive materials, the adhesive properties of a ferrofluid can be enhanced or reduced by varying the intensity or symmetry configuration of externally applied magnetic fields. Another possibility of magnetically tuning the system can be accomplished by manipulating the material properties of the ferrofluid. All this established a suggestive connection between adhesion and ferrohydrodynamic phenomena, allowing the control of important adhesive properties by magnetic means.

However, no systematic study of the adhesion phenomena in ferrofluids focusing on the role of their rheological properties or possible non-Newtonian behavior has been undertaken so far. In fact, the viscosity of the ferrofluid contemplated in Ref. [10] is assumed to be constant, and therefore independent of the magnetic field. Consequently, the influence of eventual rheological effects related to field- and shear-dependent changes in the viscosity of the magnetic fluid [13–17] has not been considered. On the other hand, the recent development of denser and more strongly magnetized ferrofluids has revealed a wide range of non-Newtonian behaviors in these liquids, such as shear-thinning, shear-thickening, normal stress differences, viscoelastic response, and a varying (Trouton) elongational viscosity. These various rheological manifestations have been scrutinized both experimentally [18,19] and theoretically [17,20–24] and are attributed to the formation of short chains when the magnetic particles are exposed to strong magnetic fields. This effect can be modeled by a polydisperse ferrofluid consisted of a small portion of larger particles forming short chains, causing the fluid to display non-Newtonian behavior, plus a large portion of smaller particles which determine the overall magnetic properties of the fluid.

In this work we analyze the adhesion properties of a chain-forming, non-Newtonian ferrofluid subjected to a spe-

*jme@df.ufpe.br

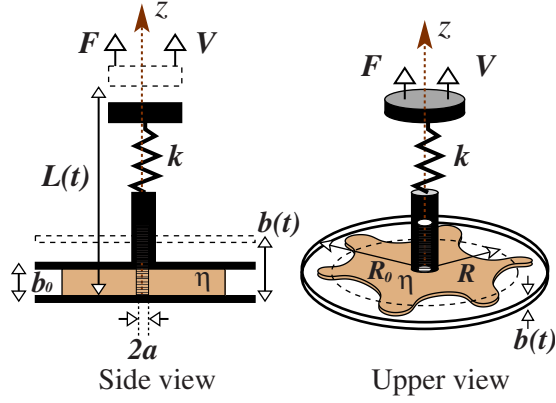


FIG. 1. (Color online) Diagrammatic representation of the probe-tack apparatus, where a non-Newtonian ferrofluid of viscosity η is confined between parallel plates and subjected to a radial magnetic field. The surrounding fluid is nonmagnetic and inviscid.

cifically designed magnetic-field configuration, which tends to empower the action of magnetic effects as the inward ferrofluid flow progresses during a probe-tack test. The investigation of this particular debonding event allows us to examine how magnetic field, viscous shear, and short chain formation affect the ferrofluid's viscosity and its adhesive strength. In a more general sense, in addition to helping for a better understanding of non-Newtonian phenomena in magnetic fluids, our study bridges the research areas of adhesion, rheology, and ferrohydrodynamics which are by themselves vastly interdisciplinary.

II. ADHESION FORCE: MAGNETOVISCOUS AND PARTICLE CHAIN-FORMATION EFFECTS

Figure 1 sketches the geometry of the probe-tack system. We consider a non-Newtonian, incompressible ferrofluid of viscosity η located between two narrowly spaced circular, flat plates. The outer fluid is nonmagnetic and of negligible viscosity. As in Refs. [3–5,10] we consider that the apparatus has a spring constant denoted by k . One end of the lifting apparatus moves at a specified constant velocity V , subjecting the upper plate to a pulling force F . The lower plate is held fixed at $z=0$, where the z axis points in the direction perpendicular to the plates. The initial plate-plate distance is represented by b_0 and the initial ferrofluid radius by R_0 . At a given time t the plate spacing is $b=b(t)$, while the deformation due to the stretching of the apparatus is $L-b$, where $L=b_0+Vt$. Due to the compliance of the measurement apparatus, the actual plate spacing b is not necessarily equivalent to L . Of course, in the case of a completely rigid apparatus we have $b=L$ and $\dot{b}=V$, where $\dot{b}=db/dt$.

The ferrofluid sample is subjected to a cylindrically radial applied magnetic field given by [25,26]

$$\mathbf{H}_a = \frac{H_0 a}{r} \hat{\mathbf{r}}, \quad (1)$$

where a is the radius of magnetic-field source, r is the radial distance from the origin of the coordinate system (located at

the center of the ferrofluid sample), H_0 is a constant, and $\hat{\mathbf{r}}$ is a unit vector in the radial direction. The experimental conditions required to obtain such a radial magnetic field are discussed in Ref. [25]. Notice that this field configuration ($H_a \sim 1/r$) is particularly convenient to examine the magnetic field induced changes in the viscosity of the ferrofluid: during the probe-tack test, as the plates separate and the magnetic fluid move radially inward, the magnetic field becomes increasingly stronger inducing more significant magnetoviscous effects.

Our main goal is to calculate the pulling force F as a function of displacement L , taking into account both hydrodynamic and magnetic contributions. First, we calculate F analytically for the completely rigid case, and subsequently we address the more realistic situation in which compliance is taken into consideration, by performing a numerical calculation. We follow Refs. [4,7] and derive F assuming that the ferrofluid interface remains circular during the entire lifting process, with time-dependent radius defined as $R=R(t)$. Conservation of ferrofluid volume leads to the relation $(R^2 - a^2)b = (R_0^2 - a^2)b_0$.

If we assume that the upper plate is not being lifted fast enough to incite any inertial effects, nor lifted high enough to alter the system being of large aspect ratio [$R(t) \gg b(t)$] a modified Darcy's law applies [10,27],

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

where $\mathbf{v}(r, \theta)$ represents the quasi-two-dimensional flow between the separating plates, p is the hydrodynamic pressure, and Ψ denotes a magnetic pressure represented by a scalar potential. The probe-tack test setup defines a particular type of flow in which the velocity field is vorticity-free and can be written (in polar coordinates) as $\mathbf{v} = (-\dot{r}/2, 0)$, where the shear rate parameter $\dot{\epsilon} = \dot{b}/b$ quantifies the flow (or, elongation) rate.

Our first task is to compute the viscosity η appearing in Eq. (2) and find out how it is influenced by the applied magnetic field, and also by other relevant effects connected to magnetic particle chain-formation and viscous shear. We follow Refs. [23,24,28] and assume that the total viscosity is related to the normal stress difference at finite shear, subtracted from its corresponding value at vanishing shear,

$$\eta = \eta_0 + \eta_m = -\frac{[T_{rr} - T_{\theta\theta}]_{\dot{\epsilon}=0}}{\dot{\epsilon}}, \quad (3)$$

where η_0 denotes the viscosity at zero magnetic field and η_m represents the magnetoviscous contribution. We call the reader's attention to the fact that, unlike previous theoretical studies [23,24], our applied magnetic field is nonuniform, possessing a radial gradient. Consequently, the basic rheological responses found in Refs. [23,24], which are quite sensitive to the symmetry properties of the imposed magnetic field, cannot be assumed *a priori* as valid for our system.

The total stress tensor including viscous and magnetic effects is defined as [13,14,23,24]

$$T_{ij} = -\tilde{p}\delta_{ij} + 2\eta_0 v_{ij} + H_i B_j - \frac{1}{2}[(M_i h_j - M_j h_i) - \lambda_2(M_i h_j + M_j h_i)], \quad (4)$$

where δ_{ik} denotes the Kronecker delta function and the parameter $\tilde{p} = p + \Psi + \mu_0 H^2/2$ with

$$\Psi = \mu_0 \int_0^H M dH, \quad (5)$$

where μ_0 denotes the magnetic permeability of free space. In addition, $v_{ij} = (\nabla_i v_j + \nabla_j v_i)/2$, $\mathbf{H}$ is the magnetic field, $\mathbf{B}$ is the magnetic-field induction, $\mathbf{M}$ is the magnetization, and $\mathbf{h} = \mathbf{M}/\chi - \mathbf{H}$, with χ denoting the ferrofluid's susceptibility. The transport coefficient λ_2 [17], which is a very important quantity for our investigation, accounts for the influence of the elongational flow, in the sense that the flow induced by the lifting of the upper plate yields a torque acting on existing chains, interfering on the rheological properties of the ferrofluid. The value of λ_2 , which lies between 0 and 1, has been related to the length of the magnetic particle chains [20,29], where $\lambda_2 \rightarrow 0$ corresponds to chainless (single particle) ferrofluids, and $\lambda_2 \rightarrow 1$ would be associated to the formation of chains (in a polydisperse ferrofluid) with a mean length of approximately five particles.

Another key ingredient for our calculation is the relaxation equation for the magnetization [17]

$$\frac{dM_i}{dt} + (\mathbf{M} \times \boldsymbol{\Omega})_i - \lambda_2 M_j v_{ij} = -(M_i - M_i^{\text{eq}})/\tau, \quad (6)$$

where $\boldsymbol{\Omega} = (\nabla \times \mathbf{v})/2$ is the vorticity of the flow, $M_i^{\text{eq}} = \chi H_i$ is a linear constitutive relation for the equilibrium magnetization, and τ is the relaxation time for the magnetization. Note that if $\lambda_2 = 0$ Eq. (6) reduces to the classical relaxation equation derived by Shliomis [15,16]. Since in our present case $\boldsymbol{\Omega} = 0$, and considering the stationary situation for which $d\mathbf{M}/dt = 0$, we can use Eq. (6) plus the fact that the tangential component of $\mathbf{H}$ and the normal component of $\mathbf{B}$ are both continuous at the fluid-fluid interface, to get

$$\mathbf{M} = \chi \Gamma \mathbf{H}_a, \quad (7)$$

with $\Gamma = \Gamma(\chi, \lambda_2, \xi) = 1/[1 + \chi + (\lambda_2 \xi/2)]$, where $\xi = \tau \dot{\epsilon}$ defines a dimensionless shear rate. Moreover, with the help of Eqs. (5) and (7) we can write the proper scalar potential for the radial field configuration as

$$\Psi(r) = \frac{\mu_0}{2} \chi \Gamma (1 - \chi \Gamma) H_a^2. \quad (8)$$

At this point we have all elements we need to evaluate the magnetoviscous contribution to the total viscosity. By substituting Eq. (7) into the formula for the total stress tensor Eq. (4), and then using the resulting expression for T_{rr} into Eq. (3) we obtain

$$\eta_m = -\frac{1}{2} \frac{\chi \lambda_2 \tau H_a^2}{[1 + \chi + (\lambda_2 \xi/2)]^2} \left[1 - \lambda_2 + \frac{\lambda_2 \xi}{2(1 + \chi)} \right]. \quad (9)$$

This expression reveals a suggestive coupling between the magnetic particle chain formation parameter λ_2 and the di-

mensionless shear rate ξ . Since $0 < \lambda_2 < 1$ we notice that $\eta_m \leq 0$, and tends to zero if the magnetic particle chains are not formed ($\lambda_2 \rightarrow 0$). Therefore, the non-Newtonian character of the ferrofluid is intimately related to the very existence of chains. Furthermore, observe that in the limit of very small shear ($\xi \rightarrow 0$) η_m assumes a simpler form, depending quadratically on λ_2 [$\eta_m \sim \lambda_2(1 - \lambda_2)$].

The determination of the pressure field is a fundamental step toward the calculation of the adhesion force. Fortunately, it can be readily computed by inserting Eq. (9) into Darcy's law Eq. (2), and integrating with respect to r yielding

$$p(r) = \frac{3\eta_0 \dot{b}}{b^3} \left\{ (r^2 - R^2) - \frac{\lambda_2 \tau \chi \Gamma^2 a^2 H_0^2}{\eta_0} \left[1 - \lambda_2 + \frac{\lambda_2 \xi}{2(1 + \chi)} \right] \ln\left(\frac{r}{R}\right) \right\} + [\Psi(r) - \Psi(R)] + p(R), \quad (10)$$

where $p(R)$ is the value of the pressure at the ferrofluid droplet boundary. To determine $p(R)$ we use the fact that $\Psi = 0$ in the nonmagnetic fluid, and the generalized pressure jump condition which expresses the equilibrium condition on the normal component of the local stress tensor across the fluid-fluid interface [13,14]

$$\mathbf{n} \cdot \Delta \mathbf{T} \cdot \mathbf{n} = \sigma \kappa, \quad (11)$$

where T_{ij} is given in Eq. (4) and $\mathbf{n}$ denotes the unit normal vector at the interface. The term at the right-hand side of Eq. (11) represents the contribution related to surface tension and interfacial curvature κ . By utilizing Eqs. (11), (7), and (4) we get

$$p(R) = p_0 - \frac{\mu_0}{2} \chi \Gamma [1 + \Gamma(1 - \chi \Gamma)^2 \lambda_2^2 \xi] H_a^2|_{r=R}, \quad (12)$$

where p_0 denotes the constant pressure outside the ferrofluid droplet. In deriving Eq. (12), as is common in this type of adhesion phenomena [3–7], we have neglected the surface tension term.

The force exerted by the lifting machine on the upper plate is calculated by integrating the total stress difference above and below the upper plate, yielding

$$F = \int [\hat{\mathbf{z}} \cdot \mathbf{T}^{\text{ff}} - \hat{\mathbf{z}} \cdot \mathbf{T}^{\text{out}}] \cdot \hat{\mathbf{z}} dA = \int_a^R [T_{zz}^{\text{ff}}(r) - T_{zz}^{\text{out}}(r)] 2\pi r dr, \quad (13)$$

where $\hat{\mathbf{z}}$ is a unit vector in the z direction, $\mathbf{T}^{\text{ff}}$ denotes the total stress tensor at the ferrofluid surface in contact with the upper plane, whereas $\mathbf{T}^{\text{out}}$ represents the corresponding stress tensor due to the outer nonmagnetic fluid. The integration is carried out over the cross-sectional area of the ferrofluid drop A . Under such circumstances, by using Eq. (4) the evaluation of Eq. (13) leads to a *dimensionless* force

$$F = \frac{\dot{b}}{b^5} \left\{ \left(\frac{\gamma-1}{\gamma} \right)^2 - \frac{N_N}{\gamma^2} \Delta \left[\frac{b}{b_0} (\gamma-1) - \frac{b^2}{b_0^2} \ln \left(1 + (\gamma-1) \frac{b_0}{b} \right) \right] \right\} + N_B \chi \Gamma \left[\Lambda \frac{(\gamma-1)}{\frac{b}{b_0} + (\gamma-1)} + \chi \Gamma \ln \left(1 + (\gamma-1) \frac{b_0}{b} \right) \right], \quad (14)$$

where $\gamma = (R_0/a)^2$, $N_N = \tau H_0^2 / \eta_0$ is a non-Newtonian Bond number related to the non-Newtonian character of the viscosity, and $N_B = (\pi \mu_0 H_0^2 a^2) / (2k\delta)$ is a magnetic Bond number for the radial magnetic-field configuration. The parameters Γ , $\Delta = -2\eta_m / (\tau H_a^2) > 0$, and $\Lambda = 2 - \chi\Gamma + \Gamma(1 - \chi\Gamma)^2 \lambda_2^2 \xi > 0$ couple χ , ξ , and λ_2 . Similar to what is done in Refs. [3,4], in Eq. (14) lengths have been rescaled by $\delta = (3\pi\eta_0 R_0^4 b_0^2 V / 2k)^{1/6}$ and velocities by V . In addition, the adhesion force is rescaled by $k\delta$. It is worth mentioning that since we are dealing with the noncompliant situation, we have $b=L$ and hence $\dot{b}=1$. Equation (14) shows $\dot{b}$ explicitly in anticipation of our analysis of the compliant apparatus situation.

Equation (14) for the adhesion force and Eq. (9) for the magnetoviscous contribution to the total viscosity are central results of this work. The basic physical effects present in the adhesion force equation can be understood simply by looking at the sign of the magnetic terms N_N and N_B . Positive magnetic terms which are multiplied by N_B in Eq. (14) lead to increased adhesion while negative terms proportional to N_N lead to decreased adhesion. The first term on the right-hand side of Eq. (14) is related to the usual purely viscous contribution in the absence of any magnetic effects. The non-trivial interplay of these contributions will dictate the final outcome for the rheological and adhesive properties of the non-Newtonian ferrofluid.

III. DISCUSSION

In order to strengthen the practical and academic relevance of our theoretical study, we ensure that the values of all relevant dimensionless quantities we utilize are consistent with realistic physical parameters related to existing probe-tack test instruments [3–7], radial magnetic-field arrangement [25], and material properties of ferrofluids [13,14,18–20,23,24,30–36]. We understand this could make our work of broader interest and eventually help experimentalists to test the predictions of our theoretical model.

The real world parameters that reflect our theoretical regime are now presented. For the typical parameters related to probe-tack experiments we take [4,5]: $k = 3.0 \times 10^5$ N/m, $R_0 = 5.0 \times 10^{-2}$ m, $b_0 = O(10^{-4}) - O(10^{-3})$ m, and $V = 7.3 \times 10^{-7}$ m/s. For the radial magnetic-field configuration [25] we use $a = 5.0 \times 10^{-3}$ m and $H_0 = 1.6 \times 10^3$ A/m. We note that the strength of the radial magnetic field generated in Ref. [25] is 1 order of magnitude larger than the one we use. It is also worth pointing out that the plate dimensions of real

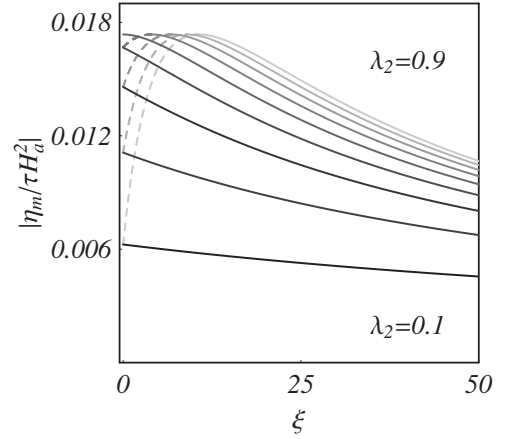


FIG. 2. Magnitude of the normalized magnetoviscous contribution to the shear viscosity as a function of the dimensionless shear ξ . Here $0.1 \leq \lambda_2 \leq 0.9$ in steps of 0.1. Lighter color means higher values of λ_2 . The dashed (solid) curves identify a shear thickening (thinning) regime.

probe-tack instruments and the size of the radial magnetic-field source are compatible. Although the practical implementation of this composed system (lifting apparatus coupled to a magnetic-field source) might not be straightforward, it is in principle viable.

Since the magnetic susceptibility of ferrofluids varies in a wide range, namely, from 1 to 80 [13,14,33–35], we take $\chi = 5$ as a representative value. Moreover, we consider that $0.1 \text{ s} \leq \tau \leq 1 \text{ s}$ [24,36]. In general, the viscosity of a ferrofluid can be tunable for almost any volume fraction of magnetic particles by properly choosing the viscosity of the carrier liquid. The higher the concentration of magnetic particles the more viscous the ferrofluid becomes. Therefore, current ferrofluids have viscosity ranging from 10^{-3} Pa s to 10^2 Pa s [13,14,30–32]. Here we choose a high viscosity ferrofluid with $\eta_0 = 10^2$ Pa s. By utilizing this set of physical parameters we obtain the following characteristic dimensionless quantities: $N_B = 5.0 \times 10^{-5}$, $N_N = 2.5 \times 10^3$, and $\gamma = 10^2$. Note that under such circumstances $N_N \gg N_B$, meaning that the non-Newtonian contribution is of major impact to our problem. The range of values we take for the dimensionless shear parameter ($0 \leq \xi \leq 50$) is also in line those employed in Refs. [18–20,23,24]. Unless otherwise stated these dimensionless parameters will be used throughout this work.

A. Changes in the viscosity

In this section we look into the details of how the magnetic effects alter the adhesion force. In order to better understand the behavior of the adhesion force, first we examine how the viscosity of the ferrofluid is affected by shear and chain formation. Figure 2 illustrates how the magnitude of the magnetoviscous contribution to the shear viscosity Eq. (9) (in units of τH_a^2) varies as a function of the dimensionless shear ξ , with the chain formation parameter changing from $\lambda_2 = 0.1$ to $\lambda_2 = 0.9$ in steps of 0.1. Lighter color indicates higher values of λ_2 . First, we recall that since η_m is negative within the interval $0 < \lambda_2 < 1$, the normalized magnetovis-

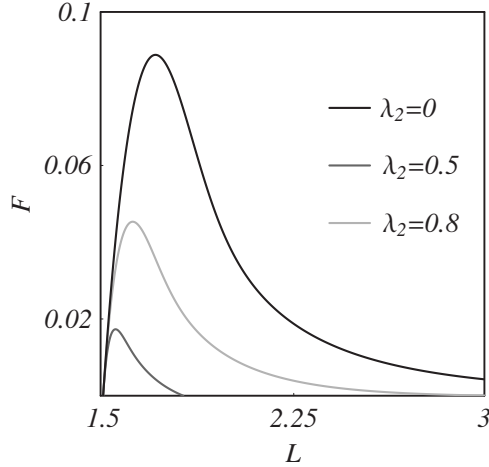


FIG. 3. Adhesion force F for the compliant situation and zero shear, as a function of displacement L , for the initial plate spacing $b_0=1.5$. The color labeling refers to distinct values of λ_2 : 0 (black curve), 0.5 (dark gray curve), and 0.8 (light gray curve).

cosity tends to decrease the value of the total viscosity η . Notice that if $\lambda_2 < 0.5$ the magnitude of the magnetoviscosity is an increasing function of λ_2 . Physically, this can be explained on the basis of the alignment of the emerging chains along the local magnetic field, favoring flow in the radial direction. It is also evident that if $\lambda_2 < 0.5$ the normalized magnetoviscosity decreases with increasing shear, clearly indicating a shear-thinning behavior.

It is worth pointing out that, regardless the value of λ_2 , all the curves tend monotonically to zero with increasing shear. This effect is somewhat expected since strong shear destroys the chains, eliminating any non-Newtonian contribution. Roughly speaking, this can be explained by the rupture of the chains (which have been formed due to interparticle interaction) due to strong viscous forces in the shear flow [19].

On the other hand, if $\lambda_2 \geq 0.5$ the curves reach their maximum values at nonzero values of shear ($\xi = \xi_{\max}$). Note that all maxima correspond to the same value of the normalized magnetoviscosity. The existence of these maxima leads to a shear-thickening behavior for $\xi < \xi_{\max}$ (dashed curves) and to a shear-thinning situation for $\xi > \xi_{\max}$ (solid curves). Observe that the shear-thickening effect is more significant for larger λ_2 which implies in longer chains. These longer structures are more susceptible to the torque exerted by the elongational flow, suppressing further stretching of the fluid, and consequently leading to higher total viscosity (this happens even at the zero shear situation). In this region ($\xi < \xi_{\max}$) the competition between torque and alignment of the chains results in shear thickening. However, if shear is further increased ($\xi > \xi_{\max}$), the chains tend to be destroyed, weakening the overall non-Newtonian effects, and promoting a shear-thinning regime.

B. Adhesion force: Zero shear limit

We proceed by examining Fig. 3 that presents the force-distance curves for thin layers of a non-Newtonian ferrofluid at the zero shear limit ($\xi \rightarrow 0$). By taking this limit we focus

on the exclusive influence of magnetic particle chain formation on the adhesive force. Typical force-distance curves increase sharply at initial stages of the plate separation process [3–12]. For an ideal viscous Newtonian liquid, there is no apparent physical reason for the actual force to start at zero, increase quickly to a peak, and then decrease abruptly. However, this behavior can be described as a result of the elasticity of the probe-tack apparatus [3,4]. We address this issue and calculate the complete form of the force-distance curves, considering the intrinsic rigidity of the lifting machine (compliant apparatus situation). To do it, we follow Refs. [3,4,10] and assume that, during the entire separation process, there is a perfect balance between viscous plus ferrohydrodynamic forces and the spring restoring (dimensionless) force $L-b$ which results from the deflection of the apparatus. Using Eq. (14) and the relation $L=b_0+t$ we can write $\dot{b}=db/dL$ so that

$$F(b, \dot{b}) = L - b. \quad (15)$$

This nonlinear differential equation is solved numerically for $b(L)$ and we find the force curves from $F=L-b(L)$.

Figure 3 compares the force-distance curve for the case without chain formation ($\lambda_2=0$, black curve), and those in which chains are formed ($\lambda_2=0.5$ and $\lambda_2=0.8$, darker and lighter gray curves, respectively). This is shown for a characteristic initial plate spacing $b_0=1.5$. The most interesting feature of Fig. 3 is actually the role of chain formation in determining the adhesion behavior as λ_2 is changed. As λ_2 varies from zero (black curve) to 0.5 (dark gray curve), the adhesion force is significantly reduced just by the action of chain formation. In fact, there is a 80% shift between the maxima of the force-displacement curves for $\lambda_2=0$ and $\lambda_2=0.5$. Conversely, if λ_2 keeps increasing ($0.5 < \lambda_2 < 1$) the opposite effect takes place, so that adhesion increases and eventually the force tends to the chainless case described by the black curve. The increase in the adhesion force is illustrated by the lighter gray curve for $\lambda_2=0.8$, which is shifted by 65% with respect to the black curve. Note that hidden in the black curve there are in fact two curves that simply overlap, namely, $\lambda_2=0$ and $\lambda_2=1$. Therefore, the zero shear situation is characterized by an “up and down” motion of the force peaks as λ_2 varies from 0 to 1. These results indicate real, potentially observable differences in behavior due to chain formation, since a shift in data as small as 20% is expected to be resolvable by current experimental techniques [37]. In this sense, our modified probe-tack test could work as a useful tool for detecting the presence of magnetic chain formation in ferrofluids. In addition, it could also help to estimate the approximate length of such structures.

A physical explanation for the phenomena depicted in Fig. 3 can be attributed to the magnetoviscous contribution to the shear viscosity as discussed in Fig. 2. In the zero shear limit the coefficients Γ and Λ appearing in the third term on right-hand side of Eq. (14) are independent of λ_2 , so that all the contribution due to the formation of chains comes exclusively from the magnetoviscous effect produced by the term multiplied by N_N in Eq. (14). As mentioned earlier in this work, if $\xi=0$ the magnetoviscous contribution to the shear viscosity Eq. (9) reduces to a parabolic function of λ_2 in such

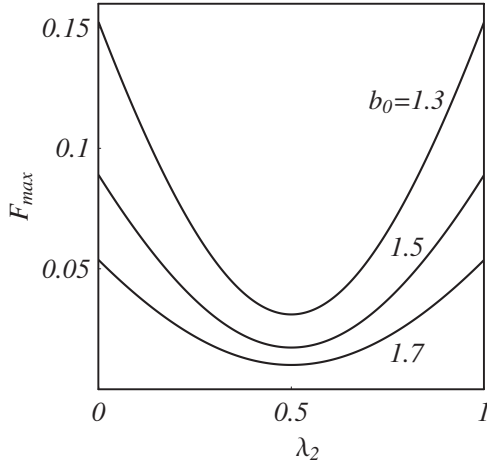


FIG. 4. The maximum value of the adhesion force $F_{\max}$ as a function of λ_2 , at the zero shear limit, for three values of b_0 : 1.3, 1.5, and 1.7.

a way it decreases (increases) if $\lambda_2 < 0.5$ ($\lambda_2 > 0.5$). This justifies the behavior shown in Fig. 3 in which the adhesion force decreases for $\lambda_2 < 0.5$ and increases otherwise. We point out that this sort of argument is also valid for the non-zero shear situation, as we will discuss in Sec. III C. The parabolic behavior mentioned above is even clearer in Fig. 4 that plots the maximum value of the adhesion force ($F_{\max}$) as a function of λ_2 for three different values of b_0 . It is also evident that by modifying b_0 no qualitative changes are observed.

C. Adhesion force: Nonzero shear situation

We close our discussion by turning to the nonvanishing shear situation and discuss how it can influence the adhesion force. Rigorously speaking, the dimensionless shear rate is given by $\xi = \dot{b}(L)/b(L)$, being obviously a quantity that varies with L , a fact that introduces some numerical difficulties for the solution of the nonlinear differential Eq. (15). However, through a number of numerical tests we have checked that ξ can be considered as a constant parameter in Eq. (15) if shear is not too large ($\xi \leq 50$). This assumption is consistent with the typical values for the dimensionless shear rate used in previous studies [23,24]. The action of ξ on the force peak ($F_{\max}$) is illustrated in Fig. 5 for $0 \leq \lambda_2 \leq 1$, and different values of ξ : 0, 2, 12, and 50. For zero shear, as commented earlier, the magnetoviscous contribution for the viscosity varies parabolically with λ_2 , making $F_{\max}$ to first decrease ($\lambda_2 < 0.5$), and then increase ($\lambda_2 > 0.5$) back to the chainless case value. In general, the behavior of the peaks result from the competition between the magnetoviscous contribution to the adhesion force [second term on the right-hand side of Eq. (14)], and the term proportional to N_B in Eq. (14). It is worth noting that the magnetoviscous term tends to diminish the adhesion force, whereas the other term tends to increase it. Here, since $N_N \gg N_B$ the magnetoviscous contribution takes over.

From Fig. 5 it can also be noticed that for nonzero values of shear the parabolic symmetry with respect to λ_2 is broken.

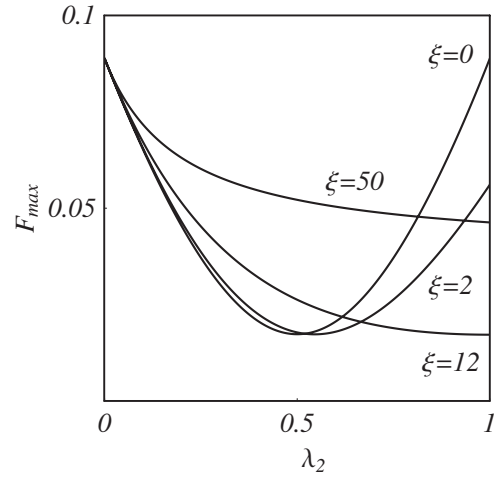


FIG. 5. The maximum value of the adhesion force $F_{\max}$ as a function of λ_2 for $b_0 = 1.5$, and different values of ξ : 0, 2, 12, and 50.

For $\lambda_2 < 0.5$ the value of $F_{\max}$ always increases with ξ , consistently with the shear-thinning signature of the magnetoviscosity η_m . On the other hand, for a given $\lambda_2 \geq 0.5$ and increasingly larger shear, $F_{\max}$ first decreases, reaches a minimum value, and then increases. This behavior takes place due to the transition from a shear-thickening to a shear-thinning regime similarly to what was obtained in Fig. 2. This happens as a result of the prevalence of the magnetoviscous contribution to the adhesion force. If sufficiently higher values of shear are considered, the magnitude of $F_{\max}$ will tend to the chainless case one. This occurs because higher values of shear fragment the chains eliminating all magnetic contributions.

Further illustration about the action of shear on the force-distance curves can be seen in Fig. 6 which depicts F as a function of L for two different values of ξ : (a) 2, and (b) 12, with $b_0 = 1.5$. These curves should be contrasted with those appearing in Fig. 3 that refers to the zero shear case ($\xi = 0$), and the same b_0 . If shear is finite and relatively small ($\xi = 2$), we notice from Fig. 6(a) that the adhesion force for the lighter gray curve is clearly smaller than the corresponding force strength for the zero shear case illustrated in Fig. 3. Conversely, the dark gray curve is slightly shifted toward larger values. Despite the fact that the minimum value of the force peak is no longer at $\lambda_2 = 0.5$, the general up and down motion of the peaks is still present. These findings can be checked from the data shown in Fig. 5.

On the other hand, for larger values of shear ($\xi = 12$), as shown in Fig. 6(b), the force drop is even more intense for the lighter gray curve, so that now it lies below the dark gray one. Note that the force peak of this curve ($\lambda_2 = 0.5$) is higher than the equivalent position shown in Fig. 6(a). This last remark is also in agreement with our discussion of Fig. 5. Differently from the $\xi = 2$ case the up and down motion of the peaks does not occur, so that by increasing λ_2 the maxima of the adhesion force decrease monotonically. Since in Fig. 6 the relative position of the gray curves are reversed as shear is increased, it is evident that one can observe distinct behaviors for F depending on the shear regime under consideration.

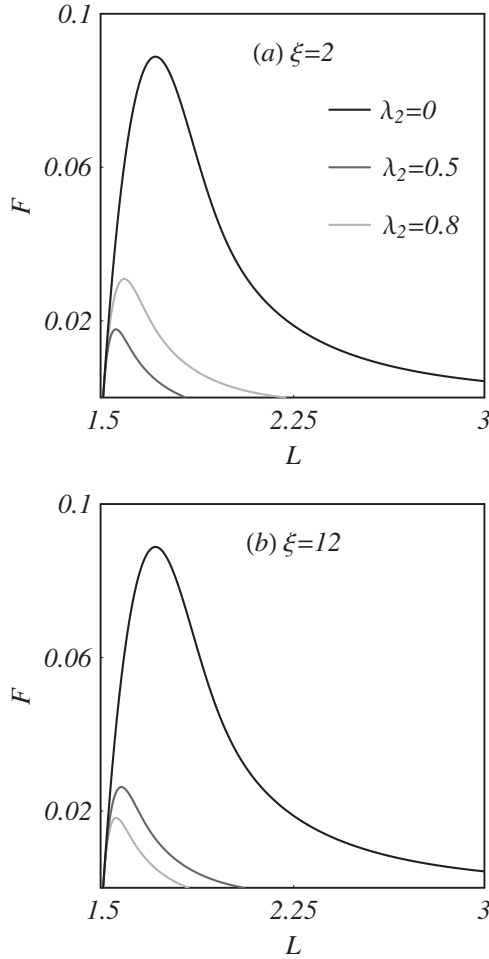


FIG. 6. Adhesion force F for the compliant situation and non-zero shear, as a function of displacement L , for $b_0=1.5$, (a) $\xi=2$, (b) $\xi=12$. The color labeling is the same as the one utilized in Fig. 3.

(low or high). Of course, if shear is increased further the two gray curves tend to overlap and coincide with the black one ($\lambda_2=0$) due to the fragmentation of chains.

IV. CONCLUDING REMARKS

We have investigated the rheological and adhesive responses of a chain-forming ferrofluid under tension submitted to an applied radial magnetic field. For this situation we have examined the interplay of magnetic, shear, and chain formation effects in determining the adhesive strength of the magnetic fluid sample. Our theoretical description is based on a generalized Darcy's law approach in which the fluid's total viscosity includes a magnetoviscous term that conveniently couples shear and magnetic contributions. One peculiar aspect of this magnetoviscosity is its dependence on the length of the magnetic particle chains formed. We have observed that as the length of the chains is allowed to vary, the non-Newtonian ferrofluid can display shear-thinning and shear-thickening behaviors.

The adhesive force is calculated using Darcy's law plus an augmented version of the stress tensor which accounts for

the existence of short chains in the ferrofluid. We have studied the adhesive features of the magnetic sample under zero and nonzero shear circumstances. In the zero shear limit, as the length of the chains is increased, we have verified that the adhesion force peak first decreases, reaches a minimum value, and then increases back to the usual chainless situation.

Nevertheless, if shear is nonzero the dependence of the adhesion force on the chain length varies with the magnitude of shear. For small shear values the qualitative behavior of the adhesion force curves is similar to the one observed for the zero shear case. However, for intermediate values of shear the up and down motion of the force peaks does not occur. Instead, the force peaks become lower and lower for increasingly larger values λ_2 . Finally, at higher shear values the chains tend to be destroyed, and consequently all adhesion curves approach the chainless situation. All these results indicate that probe-tack tests may become instrumental in checking the existence of chains in ferrofluids, also providing a valid additional method to predict the length of these structures.

Very recently, we have learned that a research group from MIT, led by McKinley [38] has been conducting controllable probe-tack experiments (in plate-plate geometry) using a magnetorheological fluid subjected to an external magnetic field produced by a small cylindrical magnet. Such a complex magnetic fluid [39] exhibits a manifested yield stress character which allows an increased resistance to shear loading regulated by a magnetic field. In addition to its intrinsic scientific and practical importance, this experiment substantiates the plausibility of the magnetically controlled probe-tack setup suggested in this work and also in Ref. [10]. Incidentally, recent stress controlled rheometer experiments [40,41] show the appearance of a magnetic field-dependent yield stress in ferrofluids. Although a theoretical study describing the interplay of yield stress, shear loading, magnetic forces, and magnetic particle chain formation in ferrofluids and magnetorheological fluids is certainly challenging, and still not available, steps toward its theoretical understanding seem as a natural extension of our current work.

In summary, we have shown that the inclusion of the magnetic particle chain formation considerably enriches the rheological properties of the system, leading to the occurrence of interesting adhesive phenomena in magnetic fluids. Our theoretical results point to tangible, potentially observable differences in behavior due to chain formation, adding to the general discussion of the question of magnetic particle chain formation on ferrofluid dynamics.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank CNPq (Brazilian Research Council) for financial support of this research through the program "Instituto do Milênio de Fluidos Complexos" under Contract No. 420082/2005-0, and also through the CNPq/FAPESQ Pronex program. We acknowledge useful discussions with R. Ewoldt, G. McKinley, A. Hosoi, A. Lindner, and S. Afkhami.

- [1] D. J. Yarusso, in *Adhesion Science and Engineering—The Mechanics of Adhesion*, edited by D. A. Dillard and A. V. Pocius (Elsevier, Amsterdam, 2002).
- [2] D. W. Aubrey, in *Aspects of Adhesion*, edited by K. W. Allen (Elsevier, New York, 1988).
- [3] B. A. Francis and R. G. Horn, *J. Appl. Phys.* **89**, 4167 (2001).
- [4] D. Derks, A. Lindner, C. Creton, and D. Bonn, *J. Appl. Phys.* **93**, 1557 (2003).
- [5] S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, and P. Fabre, *Europhys. Lett.* **62**, 244 (2003).
- [6] S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, J. Teisseire, and P. Fabre, *Eur. Phys. J. E* **15**, 97 (2004).
- [7] A. Lindner, D. Derks, and M. J. Shelley, *Phys. Fluids* **17**, 072107 (2005).
- [8] J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **69**, 016311 (2004).
- [9] J. Nase, A. Lindner, and C. Creton, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 074503 (2008).
- [10] J. A. Miranda, R. M. Oliveira, and D. P. Jackson, *Phys. Rev. E* **70**, 036311 (2004).
- [11] A. Zosel, *Colloid Polym. Sci.* **263**, 541 (1985).
- [12] H. Lakrout, P. Sergot, and C. Creton, *J. Adhes.* **69**, 307 (1999).
- [13] R. E. Rosensweig, *Ferrohydrodynamics* (Cambridge University Press, Cambridge, 1985).
- [14] E. Blums, A. Cebers, and M. M. Maiorov, *Magnetic Fluids* (de Gruyter, New York, 1997).
- [15] M. I. Shliomis, *Sov. Phys. Usp.* **17**, 153 (1974).
- [16] M. I. Shliomis, in *Ferrofluids*, Lecture Notes in Physics Vol. 594, edited by S. Odenbach (Springer, Berlin, 2002).
- [17] H. W. Müller and M. Liu, *Phys. Rev. E* **64**, 061405 (2001).
- [18] S. Odenbach, *J. Phys.: Condens. Matter* **16**, R1135 (2004); L. M. Pop and S. Odenbach, *ibid.* **18**, S2785 (2006).
- [19] S. Odenbach, L. M. Pop, and A. Y. Zubarev, *GAMM-Mitteilungen* **30**, 195 (2007).
- [20] S. Odenbach and H. W. Müller, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 037202 (2002).
- [21] A. Y. Zubarev and L. Y. Iskakova, *Phys. Rev. E* **61**, 5415 (2000); **65**, 061406 (2002).
- [22] P. Ilg, E. Coquelle, and S. Hess, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, S2757 (2006).
- [23] O. Müller, D. Hahn, and M. Liu, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, S2623 (2006).
- [24] S. Mahle, P. Ilg, and M. Liu, *Phys. Rev. E* **77**, 016305 (2008).
- [25] W. H. Heiser and J. A. Shercliff, *J. Fluid Mech.* **22**, 701 (1965).
- [26] S. Y. Molokov and J. E. Allen, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **25**, 393 (1992); **25**, 933 (1992).
- [27] D. P. Jackson, R. E. Goldstein, and A. O. Cebers, *Phys. Rev. E* **50**, 298 (1994).
- [28] R. B. Bird, R. Armstrong, and O. Hassager, *Dynamics of Polymeric Liquids* (Wiley, New York, 1977).
- [29] S. Odenbach and H. W. Müller, *J. Magn. Magn. Mater.* **289**, 242 (2005).
- [30] O. T. Mefford, R. C. Woodward, J. D. Goff, T. P. Vadala, T. G. St. Pierre, J. P. Dailey, and J. S. Riffle, *J. Magn. Magn. Mater.* **311**, 347 (2007).
- [31] S. Afkhami, Y. Renardy, M. Renardy, J. S. Riffle, and T. St. Pierre, *J. Fluid Mech.* **610**, 363 (2008).
- [32] See also Ferrotec's homepage <http://www.ferrotec.com>
- [33] J.-C. Bacri, A. Cebers, and R. Perzynski, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2705 (1994).
- [34] D. Rannacher and A. Engel, *Phys. Rev. E* **69**, 066306 (2004).
- [35] R. Perzynski and J.-C. Bacri (private communication).
- [36] J. P. Embs, S. May, C. Wagner, A. V. Kityk, A. Leschhorn, and M. Lücke, *Phys. Rev. E* **73**, 036302 (2006).
- [37] R. Ewoldt, G. McKinley, and A. Hosoi (private communication).
- [38] R. Ewoldt, G. McKinley, and A. Hosoi, *Bull. Am. Phys. Soc.* **53** (15), 252 (2008).
- [39] See for instance, A. Kawai *et al.* in Proceedings of the Eighth International Conference on Electro-Rheological and Magneto-Rheological Suspensions, edited by G. Bossis (World Scientific, Singapore, 2002).
- [40] H. Shahnazian and S. Odenbach, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 204137 (2008).
- [41] H. Shahnazian and S. Odenbach, *Int. J. Mod. Phys. B* **21**, 4806 (2007).

APÊNDICE B

**Field-controlled adhesion in confined
magnetorheological fluids**

Phys. Rev. E 80, 046313 (2009)

Field-controlled adhesion in confined magnetorheological fluids

Sérgio A. Lira and José A. Miranda*

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

(Received 10 June 2009; published 20 October 2009)

The study of reversible, functional, and controllable adhesives is a matter of considerable practical interest, and academic research. We report the adhesive response of a magnetorheological fluid confined between two parallel plates under a probe-tack test, when it is subjected to an applied magnetic field. Our analytical approach is based on a Darcy-like law formulation which considers a magnetic field-dependent yield stress behavior. The adhesion force is calculated in closed form for two different configurations produced by a Helmholtz coils setup: uniform perpendicular, and nonuniform radial magnetic fields. In both cases, we verify that adhesion force is hugely increased as a result of the field-dependent nature of the yield stress. This provides a versatile way to obtain a shear resistant, tough structural adhesive through magnetic means.

DOI: [10.1103/PhysRevE.80.046313](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.80.046313)

PACS number(s): 47.65.Cb, 47.57.Qk, 68.35.Np, 83.60.La

I. INTRODUCTION

During the last few years there has been a continuous interest in the study of the adhesion properties of fluids [1–12]. These investigations have scrutinized, both theoretically and experimentally, a variety of situations involving Newtonian, non-Newtonian (shear-thinning, shear-thickening, viscoelastic, etc.), and magnetic fluids (ferrofluids and magnetorheological fluids). A common goal in all these studies was to measure and evaluate the adhesive performance of a given fluid material through the so-called probe-tack test [13,14]. In the plate-plate variant of this test, a fluid sample is confined between two parallel plane plates, and then the upper plate is lifted vertically at a known rate. In response to this confined shearing flow a downward adhesive force normal to the upper plate is produced and properly recorded. This quantifies the adhesive strength of the fluid sample under tension as a function of the upper plate displacement.

One very important aspect in adhesion science and in its applications is the ability to control the bond strength of adhesives. With respect to this point, a suggestive control mechanism has been proposed in Ref. [7], which investigated adhesion phenomena in viscous, *Newtonian* ferrofluids. Ferrofluids [15,16] are stable colloidal suspensions of nanometersized magnetic particles suspended in a nonmagnetic carrier fluid. These magnetic fluids behave superparamagnetically and can easily be manipulated with external magnetic fields. It has been shown that the adhesive properties of a ferrofluid can be enhanced or reduced by varying the intensity, and geometric configuration of an externally applied magnetic field [7]. Within this context, a ferrofluid would act as a sort of adjustable “magnetic glue” for which the adhesion strength is regulated by magnetic means.

Most conventional adhesives are based on weakly cross-linked high-molecular weight polymers, so usually they are markedly non-Newtonian, and present very complex rheological properties. In order to conciliate the complicated non-Newtonian aspects of regular adhesive materials, and the

magnetically controlled adhesion mechanism offered by magnetic fluids, the adhesion properties of *non-Newtonian*, chain forming ferrofluids have been examined [12]. The development of denser and more strongly magnetized ferrofluids has revealed a wide range of non-Newtonian behaviors in these liquids [17,18], which are attributed to the formation of short chains when the magnetic particles are exposed to strong magnetic fields. The results obtained in Ref. [12], indicate that the existence of these short chains has a significant impact on the adhesive strength as well as on the viscosity of the ferrofluid, making it to display both shear-thinning and shear-thickening regimes. This opened up the possibility of monitoring complex rheological responses of such fluids with the assistance of applied magnetic fields.

Despite the stimulating magnetic field-induced adhesive properties displayed by both Newtonian [7] and non-Newtonian [12] ferrofluids, key effects like viscoelasticity and plasticity, which are common in ordinary adhesives, seem not to be present in such magnetic fluids. These effects are very important if one needs to increase the adhesion strength between surfaces, where a shear resistant, tough structural adhesive is necessary. As a matter of fact, the possible appearance of viscoelastic properties such as yield stress in ferrofluids, and its dependence on the applied magnetic field has been recently investigated experimentally [19,20]. Note that as opposed to Newtonian fluids, yield stress fluids [21] can support shear stresses without flowing. As long as the stress remains below to a certain critical value they do not flow, but respond elastically to deformation. It has been shown that in ferrofluids the yield stress is proportional to the square of the applied magnetic field strength. But, unfortunately, it has also been found that the field-dependent yield stress is very small [$O(10^{-2}$ Pa– 10^{-1} Pa)]. Therefore, one should not expect a dramatic change in the yield stress properties of existing ferrofluids by applying a magnetic field.

In contrast to ferrofluids which present particles with diameters of a few nanometers, magnetorheological (MR) fluids typically consist of micronsized magnetized particles dispersed in aqueous or organic carrier liquids. The unique feature of this type of magnetic fluid is the abrupt change in its viscoelastic properties upon the application of an external magnetic field [22–26]. The changes are significant

*jme@df.ufpe.br

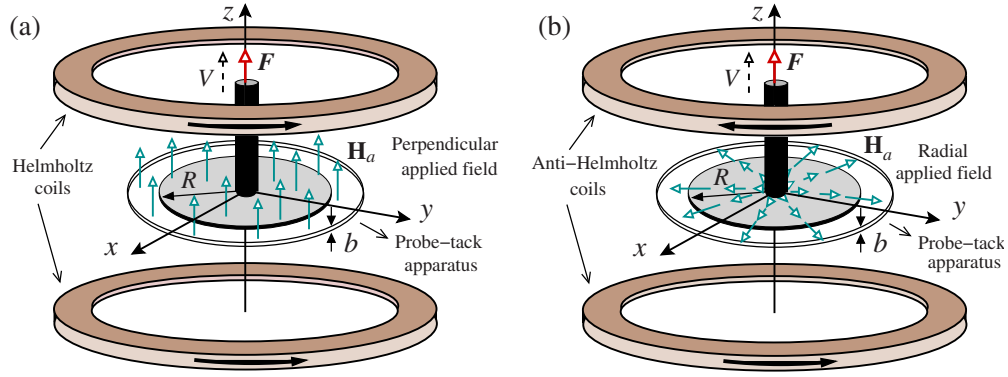


FIG. 1. (Color online) Schematic representation of the probe-tack apparatus, where a circular MR fluid drop of radius R and thickness b is confined between parallel plates, and subjected to (a) a perpendicular and (b) a radial magnetic field configuration. The direction of the electric currents flowing in the coils is also indicated. The upper plate is lifted at constant velocity V through the application of a force F . The lower plate remains at rest located at the mid-plane between the coils (x - y plane).

$[O(10^5-10^6)]$, occur within a few milliseconds, and are nearly completely reversible. In the absence of an applied field (“off” state) the magnetized particles in the suspension are randomly distributed, so that MR fluids appear similar to liquids paints, exhibiting comparable levels of apparent viscosity. When a magnetic field is applied (“on” state) the particles suspended in the fluid interact, and tend to align and link together along the field’s direction, creating long particle chains, columns, and other more complex structures. The formation of such structures restricts the motion of the fluid, causing it to display a solidlike behavior.

The efficiency of a MR fluid can be evaluated by its yield stress, which measures the strength of the field-induced structures formed. This yield stress increases as the magnitude of the applied magnetic field is increased, and is associated to the highest value of stress (for which no flow is observed) required to break the existing network of magnetic interactions. In this sense, MR fluids work as smart liquid materials whose viscoelastic properties can be conveniently tuned by an applied magnetic field. This suggests that the potential of external magnetic fields in providing controllable changes in the adhesion performance and structural toughness of magnetic fluids as originally proposed in Refs. [7,12] has not been exhausted. In the case of MR fluids, this possibility has been recently investigated by an experimental group from MIT led by Hosoi and McKinley [11] who conducted probe-tack experiments using a MR fluid subjected to an inhomogeneous magnetic field produced by a small cylindrical magnet. Their experiments revealed orders of magnitude difference in the adhesion properties of the MR fluid when the magnetic field is applied [11]. It has also been found that the yield stress depends quadratically on the strength of the applied field. Despite these promising news, a systematic theoretical study of the adhesion phenomena in confined MR fluids under probe-tack test circumstances still needs to be undertaken. This is the main purpose of this work.

In this paper we study the adhesion properties of a confined MR fluid, subjected to two distinct magnetic field configurations as sketched in Fig. 1: (a) perpendicular, when the applied field is uniform and acts perpendicular to the plates of the probe-tack apparatus; and (b) radial, for a radially

increasing in-plane field which is tangential to the plates. This allows us to examine how the adhesive strength of the MR fluid depends on the mutual orientation of the magnetic field and the direction of deformation. Under such circumstances, the combined influence of the magnetic field arrangement and the field-dependent yield stress in determining the adhesive response of the fluid is studied analytically. The bond strength obtained for the general situation involving both magnetic field and field-induced yield stress is contrasted with the responses of other two important scenarios in which, first, there is no applied magnetic field (yield stress fluid, but effectively nonmagnetic), and then the magnetic field is applied, but the fluid is assumed to be of low yield stress (fluid is magnetic, but of negligible field-induced yield stress). In summary, the purpose of our work is to study the coupling between field-induced structuring and hydrodynamic interactions, and examine their role in providing a control of the adhesive strength of MR fluids by means of applied magnetic fields.

II. CALCULATION OF THE ADHESION FORCE: DARCY-LIKE LAW APPROACH

Figure 1 sketches the geometry of the system. We consider a MR fluid confined between two narrowly spaced circular, flat plates. One end of the lifting apparatus, connected to the upper plate, moves at a specified constant velocity V , subjecting this plate to a pulling force $\mathbf{F} = F \hat{\mathbf{z}}$, where $\hat{\mathbf{z}}$ is the unit vector along the z -axis. We consider that the apparatus has a spring constant k , and that the lower plate is held fixed at $z=0$. The initial plate-plate separation is represented by b_0 , and the initial radius of the fluid drop is denoted by R_0 . At a given time t the plate spacing is given by $b = b_0 + Vt$, where $V = \dot{b} = db/dt$.

The confined MR fluid is subjected to two different magnetic field configurations (Fig. 1), both produced by a pair of current-carrying coils such that the applied field is (a) uniform and perpendicular or (b) radially increasing and coplanar with the lower plate. The coils are mounted so they are parallel to (and coaxial with) the plates. Note that these two distinct magnetic field configurations can be conveniently

obtained by using a single magnetic coils arrangement, the only difference being the relative direction of the electric currents flowing in the coils.

Our aim is to calculate the pulling force F analytically as a function of the upper plate displacement b , by taking into account the viscoelastic and magnetic nature of the yield stress MR fluid. As shown in Ref. [2] the compliance of the lifting apparatus can be safely neglected. Moreover, we follow Refs. [2–9] and derive F assuming that the border of the MR fluid drop remains circular during the entire lifting process, with time-dependent radius defined as $R=R(t)$. Conservation of fluid volume leads to the relation $R^2b=R_0^2b_0$.

Within the framework of the lubrication approximation, where the distance between the plates b is much smaller than the radius R of the fluid drop, and by neglecting inertial effects, a Darcy-like law for a yield stress fluid can be written as [27–30]

$$\frac{dp}{dr} = \frac{2\sigma_y}{b} [1 + f(\dot{\gamma})], \quad (1)$$

where p is the gap-averaged hydrodynamic pressure, σ_y is the yield stress, $\dot{\gamma} \sim V/b$ denotes the shear rate, and the function $f(\dot{\gamma})$ includes viscous contributions and tends to zero when $\dot{\gamma} \rightarrow 0$.

By assuming a low shear regime, taking into account the contribution of magnetic forces, and the existence of a magnetic field-dependent yield stress $\sigma_y = \sigma_y(H)$, we rewrite Eq. (1) as a modified Darcy's law for confined MR fluids

$$\frac{d\Pi}{dr} = \frac{2\sigma_y(H)}{b}, \quad (2)$$

where

$$\Pi = \frac{1}{b} \int_0^b [p - \Psi] dz \quad (3)$$

is a gap-averaged generalized pressure in which

$$\Psi = \mu_0 \int_0^H M dH \quad (4)$$

denotes a magnetic pressure, where μ_0 denotes the magnetic permeability of free space, and M is the magnetization of the MR fluid. In this context, the magnetic body force acting on the MR fluid is given by $\mu_0 M \nabla H$ [15,16], where H is the local magnetic field. The low shear rate limit ($\dot{\gamma} \rightarrow 0$) is justified by the fact that in probe-tack experiments $\dot{\gamma}$ is usually very low [2,4,5,9]. The replacement of p by the generalized pressure Π is also a standard procedure in the study of confined magnetic fluid flow problems [31,32].

On the basis of the experimental findings of Refs. [11,19,20] and in agreement with the theoretical models discussed in Refs. [24–26], we assume the following relation between the yield stress and the local magnetic field H ,

$$\sigma_y(H) = \sigma_{y0} + \alpha H^2, \quad (5)$$

where σ_{y0} represents the yield stress in the absence of the magnetic field, and α is a constant that depends on the material properties of the MR fluid, being proportional to the

particle volume fraction [26]. In general the field dependence of a yield stress fluid is represented by a power law $\sigma_y(H) \sim H^n$ with $1 \leq n \leq 2$, and the case we consider here $n=2$ is the one for which the magnetization is linearly related to the applied magnetic field [24–26] $\mathbf{M} = \chi \mathbf{H}_a$, where χ is the magnetic susceptibility. This linear relation holds as long as $H_a \ll H_{sat}$, where H_{sat} is the field magnitude at saturation magnetization [$O(10^2 \text{ kA/m} - 10^3 \text{ kA/m})$].

The local magnetic field can include contributions from the applied field as well as the demagnetizing field. We consider only the lowest-order effect of the magnetic interactions [33]. Thus, in the perpendicular situation, we include the demagnetizing field produced by the uniform magnetization resulting from the applied field. However, in the radial field case, we consider only the action of the applied field, and neglect demagnetizing effects. Despite the similarity of these assumptions with the ones considered for the case of ferrofluids [7], we stress that the Darcy's law form given by Eq. (2) and the existence of a sizable magnetic field-dependent yield stress as expressed by Eq. (5) are unique features of MR fluids.

The force exerted by the lifting apparatus on the upper plate is calculated by integrating the hydrodynamic pressure difference above and below it [7,12], yielding

$$F = \int_0^R 2\pi r dr \left\{ [\Pi(R) - \Pi(r)] + [\Psi(R) - \Psi(r)] + \frac{1}{2} \mu_0 [M_r^2(R) - M_z^2(r)] \right\}. \quad (6)$$

Notice that the first term inside the curly brackets is readily calculated by integrating Eq. (2). On the other hand, the terms $M_r(R)$ and $M_z(r)$ denote the normal component of the magnetization evaluated at the boundaries $r=R$, and $z=b$, respectively. These terms derive from the pressure jump boundary condition [15,16]

$$\Delta p = -\frac{1}{2} \mu_0 M_n^2, \quad (7)$$

where as in Refs. [2,9] we have neglected surface-tension effects. In Eq. (7), M_n represents the normal component of the magnetization at the fluid boundaries.

III. TWO FIELD CONFIGURATIONS: RESULTS AND DISCUSSION

In this section we calculate closed-form expressions for the adhesion force [Eq. (6)] by considering that the applied magnetic field is perpendicular, or radially symmetric. For each case, we discuss how the force F varies as a function of the plate separation b for typical values of the dimensionless control parameters of the system. While presenting our results we make sure that the values of all relevant dimensionless quantities we utilize are consistent with realistic physical parameters related to existing probe-tack test instruments, magnetic field arrangements, and material properties of MR fluids. For the typical parameters related to probe-tack experiments we take [2,4,5,9]: $k=5.0 \times 10^5 \text{ N/m}$, R_0

$=10^{-2}$ m, $b_0=10^{-4}-10^{-3}$ m, and $V=10^{-7}-10^{-6}$ m/s. While dealing with the strength of the magnetic fields, we consider relatively low values $5 \leq H_0 \leq 30$ kA/m which are easily achievable by using a typical Helmholtz coils setup, where the radius of a coil is considerably larger than the radius of the MR fluid droplet. The characteristic length L related to the radial magnetic configurations is of the order of a few centimeters [34]. It is also worth pointing out that the plate dimensions of real probe-tack apparatus and the size of the magnetic coils are compatible. Regarding the material properties of the MR fluid we take $\alpha=3.0 \times 10^{-7}$ N/A² [11,19] and consider that the “off” state yield stress σ_{y0} varies from 3 to 45 Pa [11,35]. Finally, for the magnetic susceptibility we take $0.1 \leq \chi \leq 1$ [36].

A. Perpendicular magnetic field

First, we consider the perpendicular field case in which a uniform magnetic field,

$$\mathbf{H}_a = H_0 \hat{\mathbf{z}}, \quad (8)$$

is applied normal to the parallel plates of the probe-tack apparatus. In a laboratory this perpendicular field configuration can be readily generated by a pair of identical Helmholtz coils whose electric currents have the same magnitude and flow in the same direction. In consequence to its relatively easy practical implementation the perpendicular field arrangement has been largely utilized to investigate both experimentally and theoretically various aspects of the physics behind complex magnetic fluids.

Due to the demagnetizing effects [15,16], the uniformity of the perpendicular magnetic field is distorted inside the MR fluid sample. Our calculation takes such important effects into consideration in an explicit manner. By utilizing Eq. (4) and considering that the local magnetic field differs from the externally applied field by a droplet-shape-dependent demagnetizing field such that $\mathbf{H} = \mathbf{H}_a + \mathbf{H}_d$, where $\mathbf{H}_d = -\nabla \varphi$, the magnetic pressure for the perpendicular field can be obtained. The magnetic potential φ arises from magnetic charges along the top and bottom surfaces of the circular fluid domain, and is equivalent to the one calculated for a parallel-plate capacitor [37].

By using Eqs. (3) and (4) we can describe the MR fluid boundary by a simple closed curve C parametrized by arclength s and rewrite the gap-averaged magnetic pressure as [7,31,32]

$$\Psi_{\perp} = \frac{\mu_0 M^2}{2\pi b} \left\{ \oint_C ds' \hat{\mathbf{D}} \times \hat{\mathbf{t}}(s') + \oint_C dx' \ln[(y-y') + \sqrt{D^2 + b^2}] \right\}, \quad (9)$$

where $x=x(s)$, $x'=x(s')$, etc., $\hat{\mathbf{t}}(s')$ is the unit tangent vector at arclength s' , and $\hat{\mathbf{D}}=\mathbf{D}/D$ is the unit difference vector pointing from the point $\mathbf{r}=(x,y)$ to the point $\mathbf{r}'=(x',y')$. Substituting Eq. (9) into Eq. (6) results in a *dimensionless* adhesion force

$$F_{\perp} = \frac{1}{b^{5/2}} \left\{ 1 + N_N^{\perp} \left[1 - \frac{24\chi\beta}{\pi b^{3/2}} \int_0^1 u du \int_u^1 \mathcal{I}(u') du' \right] \right. \\ \left. - N_B^{\perp} \frac{\chi^2}{b} \left[\frac{\pi}{2} - \frac{4\beta}{b^{3/2}} \left(\int_0^1 \mathcal{I}(u) u du - \frac{1}{2} \mathcal{I}(1) \right) \right] \right\}, \quad (10)$$

where

$$\mathcal{I}(u) = \int_0^{\pi/2} \left(\frac{1-u+2u \sin^2 \omega}{\sqrt{(1-u)^2 + 4u \sin^2 \omega}} \right) d\omega \\ + \frac{1}{2} \int_0^{\pi} \ln \left[\sqrt{1 + (1-u)^2 \frac{R^2}{b^2} + 4 \frac{R^2}{b^2} u \sin^2 \omega} \right. \\ \left. - \frac{R}{b} \sin 2\omega \right] \sin 2\omega d\omega. \quad (11)$$

$N_B^{\perp}=(\mu_0 H_0^2 R_0^2 b_0)/k\zeta^2$ is the magnetic Bond number for the perpendicular magnetic field configuration, $N_N^{\perp}=\alpha H_0^2/\sigma_{y0}$ is the “non-Newtonian” dimensionless parameter which measures the relative strength of magnetically induced yield stress effects with respect to the “off” state yield stress. The parameter $\beta=(b_0^{1/2} R_0)/\zeta^{3/2}$ is a dimensionless geometric factor related to the demagnetizing field. Note that the adhesion force obtained in Eq. (10) has been rescaled by $k\zeta=(2\pi\sigma_{y0}R_0^3 b_0^{3/2})/3\zeta^{5/2}$. In addition, lengths have been rescaled by ζ . This somewhat complex rescaling of the data has been originally introduced by the work of Derks *et al.* [2], where adhesion phenomena in nonmagnetic fluids have been studied both experimentally and theoretically. For consistency, and also to allow a more direct connection with Refs. [2,7,12] we adopted the same rescaling. We point out that, after appropriate reintroduction of dimensions, our adhesion force expression (10) agrees with the equivalent formula obtained in Refs. [2,28], which examined the considerably simpler case where the yield stress fluid is nonmagnetic ($N_B^{\perp}=N_N^{\perp}=0$).

Figure 2 plots the force-distance curves for the perpendicular field case, assuming that $\beta=3.16 \times 10^3$, $b_0=10$, and $\chi=0.1$. Figure 2(a) considers a fixed value of $N_B^{\perp}=0.15$ and three different values of $N_N^{\perp}$: 62.50 (light gray curve), 31.25 (medium gray curve) and 15.62 (dark gray curve). As expected, by inspecting Fig. 2(a) we verify that for a fixed value of $N_B^{\perp}$, the adhesion force becomes increasingly larger for higher values of the non-Newtonian parameter $N_N^{\perp}$. Recall that in practice the magnitude of $N_N^{\perp}$ can be tuned by varying the strength of the applied field (H_0), or by manipulating the magnetic properties of the MR fluid (α), namely, its particle volume fraction. This is exactly the type of control mechanism that can be used to either enhance or decrease the adhesion performance of a MR fluid by magnetic means.

A log-log plot of the force-distance curves is presented in Fig. 2(b) where the lifting of the upper plate occurs for three distinct situations: (i) field-dependent yield stress MR fluid under the influence of a perpendicular field ($N_N^{\perp}=62.50$ and $N_B^{\perp}=0.15$, solid gray curve); (ii) field-independent yield stress MR fluid under the influence of a perpendicular field ($N_N^{\perp}=0$ and $N_B^{\perp}=0.15$, solid black curve); and (iii) MR fluid

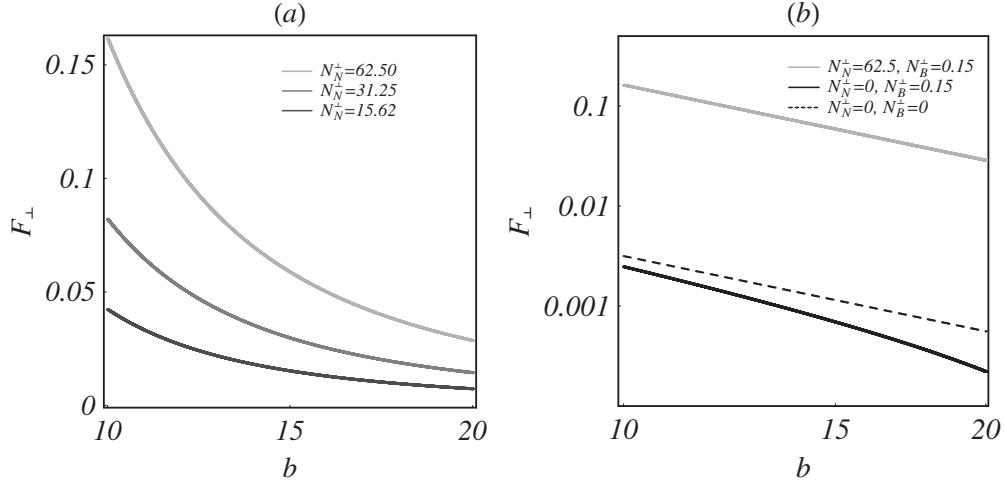


FIG. 2. Adhesion force for the perpendicular field case $F_{\perp}$ as a function of displacement b , for (a) $N_B^{\perp}=0.15$ and three values of $N_N^{\perp}$; and (b) contrasting the case of zero applied field (dashed curve), with the ones assuming the action of the perpendicular field, for a field-independent (solid black curve), and a field-dependent (solid gray curve) yield stress MR fluid. It is assumed that $\beta=3.16 \times 10^3$, $b_0=10$, and $\chi=0.1$.

in the absence of an applied magnetic field, or “off” state MR fluid ($N_N^{\perp}=0$, $N_B^{\perp}=0$, dashed curve). The first noteworthy aspect of this system is the decrease in adhesion force purely due to the magnetic field, i.e., when the field-dependent yield stress is negligible. This can be verified by observing that the solid black curve lies below the dashed one. We point out that the relative (minimum) difference between these two curves is on the order of 22%. This result indicates a real, potentially observable difference in behavior due to the magnetic field, since a shift in data as small as 20% is expected to be resolvable by current experimental techniques [38]. This behavior (decrease in $F_{\perp}$) for field-independent yield stress MR fluids is similar to the one detected in Ref. [7] for Newtonian ferrofluids subjected to a perpendicular field. Even though magnetic dipole-dipole repulsion tends to make the confined droplet to spread out (what would make the adhesion force to increase), the normal component of the magnetization acting on the upper plate has a more relevant role, and the net effect is a decrease in adhesion.

A completely different scenario is revealed when one considers the situation involving a field-dependent yield stress MR fluid [gray curve in Fig. 2(b)]. In this case one can verify a dramatic increase in $F_{\perp}$ with respect to the nonmagnetic situation (dashed curve). Notice that here the effect exclusively due to the magnetic field, which tends to diminish $F_{\perp}$, is completely obscured by the field-dependent yield stress contribution. In fact the adhesion force for the field-dependent yield stress MR fluid is about 50 times larger than the one calculated for the nonmagnetic case. Although an increase in the value of the adhesion force when one increases the yield stress is not really surprising, such an enormous field-induced magnification could not be trivially anticipated. We stress that this is a very significant increase in comparison with the usual responses computed for Newtonian (typical increase around 20–30%) [7] and non-Newtonian (increase of roughly 80%) [7] ferrofluids. This expressive change in the adhesion strength of the fluid material is due the formation of large particle chains, and the important de-

pendence of its yield stress behavior on the magnetic field as expressed in Eq. (5). It is also worth noting that analogous order-of-magnitude difference has been observed experimentally in Ref. [11], where a field-dependent yield stress MR is subjected to the magnetic field of a small magnet.

We close our discussion about the perpendicular field case by adding a few remarks about Fig. 2(b). Up until this point we have focused our analysis on the magnitude of the adhesion force. Now we comment on the specific form of the force displacement curves, by addressing their dependence on the plate separation b . We begin by inspecting Eq. (10), and consider the zero applied field case ($N_N^{\perp}=N_B^{\perp}=0$) where $F_{\perp} \sim b^{-5/2}$ as represented by the dashed line. This is in agreement with the results originally obtained in Refs. [2,28] for nonmagnetic fluids. Another case of interest is the one related to the field-independent yield stress situation ($N_N^{\perp} \neq 0$ and $N_B^{\perp} \neq 0$) as depicted by the solid black curve. Under such circumstances, the demagnetizing term proportional to β contributes to an enhanced adhesion, and presents a non-trivial dependence on b , where a term proportional to $b^{-5/2}$ is multiplied by the complicated integral expression given by Eq. (11). On the other hand, the remaining term proportional to $N_B^{\perp}$ comes from the normal magnetization piece in Eq. (6), and scales as b^{-1} , acting to decrease the adhesion force. Since in Fig. 2(b) the solid black curve lies below the dashed one, we conclude that the normal magnetization term is prevalent. The net contribution of all the terms proportional to $N_B^{\perp}$ results in the following scaling: $\sim b^{-2.9}$ for smaller b , and $\sim b^{-4.7}$ for larger b .

Finally, we turn to the field-dependent yield stress case ($N_N^{\perp} \neq 0$, $N_B^{\perp} \neq 0$) related to the solid gray curve in Fig. 2(b). Now, the demagnetizing term proportional to $N_N^{\perp}$ and β tends to decrease the adhesion, presenting a complex dependence proportional to b^{-4} multiplied by the integral term. However, the dominant term is the one proportional to $N_N^{\perp}$, and independent of β which scales with $b^{-5/2}$. Note that this is the term that dramatically increases the adhesion force, but still retains the same scaling of the zero magnetic field situation.

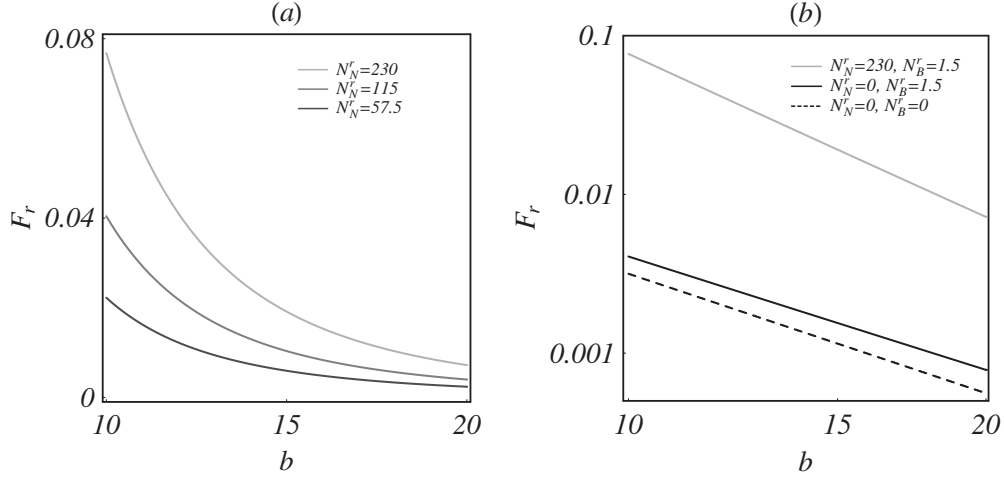


FIG. 3. Adhesion force for the radial field case F_r as a function of displacement b , for (a) $N_B^r=1.5$ and three values of N_N^r ; and (b) contrasting the case of zero applied field (dashed curve), with the ones assuming the action of the radial field, for a field-independent (solid black curve), and a field-dependent yield (solid gray curve) stress MR fluid. It is assumed that $b_0=10$, and $\chi=0.1$.

B. Radial magnetic field

Very recently a theoretical study [39] has proposed that simply by reversing the direction of the current in one of the Helmholtz coils (“anti-Helmholtz” arrangement [40]), one could produce a very simple, but innovative nonuniform magnetic field disposition, given by

$$\mathbf{H}_a = \frac{H_0}{L} r \hat{\mathbf{r}} \quad (12)$$

at $z=0$, where L is a characteristic length, and $\hat{\mathbf{r}}$ represents the unit vector along the radial direction. This purely radial magnetic field acts in the mid-plane between the coils, and its real world existence has been already checked experimentally [34]. For this particular field configuration, the magnetic pressure given by Eq. (4) can be readily written as

$$\Psi_r(r) = \frac{\mu_0 \chi H_0^2 r^2}{2L^2}. \quad (13)$$

Notice that the radial applied field naturally presents a radial gradient, so that at lowest order in the magnetic force we can neglect the demagnetizing field contribution.

Before proceeding with the calculation of the adhesion force, it is worth mentioning that due to the fully three-dimensional divergence-free condition $\nabla \cdot \mathbf{H}_a = 0$, near the $x-y$ plane we actually have magnetic field contributions along the radial (H_a^r) and axial (H_a^z) directions. Under the circumstances that the radius of the coils is much larger than the dimension of the MR fluid sample, we have found that

$$\frac{H_a^r}{H_a^z} = -\frac{1}{2} \frac{r}{z}. \quad (14)$$

Therefore, for the large aspect ratio situation [$R(t) \gg b(t)$] occurring under probe-tack tests we can say that $H_a^r \gg H_a^z$. Consequently, the applied field can be considered simply as radial. Moreover, for this situation we have verified that the axial field contribution for the adhesion force is indeed much smaller [$\sim 10^2 - 10^3$ times smaller] than its radial counterpart.

By taken into account the discussion above, and by substituting Eq. (13) into Eq. (6) we obtain the *dimensionless* adhesion force

$$F_r = \frac{1}{b^{5/2}} + N_N^r \frac{1}{b^{7/2}} + N_B^r \chi \left(\chi + \frac{1}{2} \right) \frac{1}{b^2}, \quad (15)$$

where $N_B^r = (\pi \mu_0 H_0^2 R_0^4 b_0^2) / (2k \zeta^3 L^2)$ is the magnetic Bond number in the radial field case, and $N_N^r = (3 \alpha H_0^2 R_0^2 b_0) / (5 \sigma_{y0} \zeta L^2)$ is the non-Newtonian parameter. We stress that the radial adhesion force is made dimensionless by using the same rescaling utilized in the perpendicular field case.

Figure 3 depicts the force-distance curves for the radial field case, assuming that $b_0=10$, and $\chi=0.1$. Figure 3(a) considers a fixed value of $N_B^r=1.5$, and three different values of N_N^r : 230 (light gray curve), 115 (medium gray curve), and 57.5 (dark gray curve). Similarly to what has been discussed in the perpendicular field case [Fig. 2(a)] here we observe that by increasing the value of the non-Newtonian parameter N_N^r an increasingly larger adhesion force results. We point out that the similarity of behaviors shown in Figs. 2(a) and 3(a) occurs despite the differences in the symmetry properties of these magnetic field arrangements.

Figure 3(b) illustrates a log-log plot of the force-distance curves, where the lifting occurs for three distinct situations: (i) field-dependent yield stress MR fluid under the influence of a radial field ($N_N^r=230$, $N_B^r=1.5$, solid gray curve); (ii) field-independent yield stress MR fluid under the influence of a radial field ($N_N^r=0$, $N_B^r=1.5$, solid black curve); and (iii) MR fluid in the absence of an applied magnetic field, or “off” state MR fluid ($N_N^r=0$, $N_B^r=0$, dashed curve). In contrast to the perpendicular field case, in Fig. 3(b) we notice that the sole action of the radial field produces an increase of roughly 28% in the adhesion force with respect to the nonmagnetic situation. The origin of this behavior can be justified by the existence of an inherent field gradient along the outward radial direction, which tends to spread out the fluid droplet, making the lifting process more difficult.

Once again we verify that adhesion force is hugely increased for the case of the field-dependent yield stress MR fluid, as illustrated by the gray curve in Fig. 3(b). In this radial case the adhesion force is about 23 times larger than the one calculated for the nonmagnetic situation (dashed curve). This makes evident the great significance of the the yield stress field dependence in determining the adhesion behavior in MR fluids for both the radial and perpendicular field setups.

We conclude this section by briefly discussing the specific form of the force displacement curves under the radial magnetic field configuration shown in Fig. 3(b). As expected we observe from Eq. (15) that for the zero applied field case ($N_N^r = N_B^r = 0$) $F_r \sim b^{-5/2}$, corresponding to the dashed line. On the other hand, the contribution of the magnetic field ($N_N^r = 0$ and $N_B^r \neq 0$) related to the solid black curve introduces an additional b^{-2} dependence, which will be dominant for larger values of b . As commented earlier this happens due to the intrinsic gradient provided by the applied magnetic field. Finally, since $N_N^r \gg N_B^r$ the consideration of the field-induced yield stress adds a substantial modification on the behavior of the adhesion force, making it to vary according to $F_r \sim b^{-7/2}$ (solid gray curve). So, the field-dependent yield stress leads to a more significant drop of F_r with b as compared to the zero applied field case. Physically, this could be expected from the very nature of the radial magnetic field: due to volume conservation as b is increased the droplet contracts, and moves toward regions of lower magnetic field intensity, leading to a stronger decrease in the yield stress value. It is worth noting that the influence of the field-dependent yield stress is twofold: it hugely increases the magnitude of F_r , and also modifies its dependence on b .

IV. CONCLUDING REMARKS

One of the most desirable properties for an ideal adhesive material would be the capability of switching its adhesive strength on and off in a reversible way via an external controlling mechanism. In this work, we exploited this possibility by examining a confined plate-plate system in which a magnetorheological fluid behaves as such “smart” adhesive, when subjected to an external magnetic field. By employing a Darcy-like law approach, and considering an explicit magnetic field dependence of the yield stress, we have been able

to evaluate the adhesion performance of the MR fluid. Two magnetic field configurations have been considered by using basically the same Helmholtz coils arrangement, where either a uniform perpendicular field, or a nonuniform radial field can be generated. Our analytical calculations indicate that for both field configurations one obtains adhesive forces which can be dramatically larger than the ones measured by usual situations in which field-dependent yield stress effects are not taken into account. While both field configurations lead to an enhanced adhesion force, we have detected that they behave differently regarding their scaling with respect to the plate separation b : if on one hand the perpendicular field keeps the same scaling as the zero-field case ($F_\perp \sim b^{-5/2}$), on the other hand the radial field introduces a distinct scaling where $F_r \sim b^{-7/2}$.

It is worthwhile to note that mechanisms of magnetically enhanced adhesion have been previously investigated for Newtonian [7], and non-Newtonian ferrofluids [12]. Nevertheless, the increase in adhesion calculated for these systems is quite modest in comparison with the order-of-magnitude differences we have predicted in this work for magnetorheological fluids.

We point out that our theoretical results have not yet been verified by experiments. An interesting experiment on the investigation of adhesive properties of MR fluids have been recently performed by Ewoldt *et al.* [11,30] who studied the action of an inhomogeneous magnetic field produced by a small cylindrical magnet. However, considering the relative simplicity of the Helmholtz coils experimental setup we hope that experimentalists will feel motivated to check our theoretical predictions. Of course, our analytical model is an initial attempt to get some insight about the potential use of MR fluids as “smart” adhesives so that more complicated effects like cavitation and wetting failure have not been considered. Again, we expect that theorists will be inclined to add these contributions into more sophisticated theoretical descriptions of the system in the future.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank CNPq (Brazilian Research Council) for financial support of this research through the program “Instituto Nacional de Ciência e Tecnologia de Fluidos Complexos (INCT-FCx)” and also through the CNPq/FAPESQ Pronex program.

-
- [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] M. Tirumkudulu, W. B. Russel, and T. J. Huang, *Phys. Fluids* **15**, 1588 (2003).
 - [4] S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, and P. Fabre, *Europhys. Lett.* **62**, 244 (2003).
 - [5] S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, J. Teisseire, and P. Fabre, *Eur. Phys. J. E* **15**, 97 (2004).
 - [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] M. Ben Amar and D. Bonn, *Physica D* **209**, 1 (2005).
 - [9] A. Lindner, D. Derks, and M. J. Shelley, *Phys. Fluids* **17**, 072107 (2005).
 - [10] J. Nase, A. Lindner, and C. Creton, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 074503 (2008).
 - [11] R. Ewoldt, G. McKinley, and A. Hosoi, *Bull. Am. Phys. Soc.* **53**(15), 252 (2008).
 - [12] S. A. Lira and J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **79**, 046303 (2009).
 - [13] A. Zosel, *Colloid Polym. Sci.* **263**, 541 (1985).
 - [14] H. Lakrout, P. Sergot, and C. Creton, *J. Adhes.* **69**, 307 (1999).
 - [15] R. E. Rosensweig, *Ferrohydrodynamics* (Cambridge University Press, Cambridge, 1985).

- [16] E. Blums, A. Cebers, and M. M. Maiorov, *Magnetic Fluids* (de Gruyter, New York, 1997).
- [17] S. Odenbach, J. Phys.: Condens. Matter **16**, R1135 (2004); L. M. Pop and S. Odendach, *ibid.* **18**, S2785 (2006).
- [18] S. Odenbach, L. M. Pop, and A. Y. Zubarev, GAMM-Mitteilungen **30**, 195 (2007).
- [19] H. Shahnazian and S. Odenbach, Int. J. Mod. Phys. B **21**, 4806 (2007).
- [20] H. Shahnazian and S. Odenbach, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 204137 (2008).
- [21] H. A. Barnes, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **81**, 133 (1999).
- [22] J. Rabinow, AIEE Trans. **67**, 1308 (1948).
- [23] J. M. Ginder, in *Encyclopedia of Applied Physics*, edited by G. L. Trigg (VCH, Weinheim, 1996), Vol. 16, p. 487.
- [24] J. M. Ginder, MRS Bull. **23**, 26 (1998).
- [25] G. Bossis, S. Lacis, A. Meunier, and O. Volkova, J. Magn. Magn. Mater. **252**, 224 (2002).
- [26] S. Genç and P. P. Phulé, Smart Mater. Struct. **11**, 140 (2002).
- [27] P. Coussot, J. Fluid Mech. **380**, 363 (1999).
- [28] G. H. Covey and B. R. Stanmore, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **8**, 249 (1981).
- [29] A. Lindner, P. Coussot, and D. Bonn, Phys. Rev. Lett. **85**, 314 (2000).
- [30] R. Ewoldt, Ph.D. thesis, Massachusetts Institute of Technology, 2009.
- [31] D. P. Jackson, R. E. Goldstein, and A. O. Cebers, Phys. Rev. E **50**, 298 (1994).
- [32] A. O. Cebers, Magnetohydrodynamics **17**, 113 (1981).
- [33] M. Igonin, Ph.D. thesis, University Paris 7 and University of Latvia, 2004.
- [34] C.-Y. Chen, Y.-S. Yang, and J. A. Miranda, Phys. Rev. E **80**, 016314 (2009).
- [35] P. Kuzhir, M. T. López-López, and G. Bossis, Phys. Fluids **21**, 053101 (2009).
- [36] P. P. Phulé and J. M. Ginder, Int. J. Mod. Phys. B **13**, 2019 (1999).
- [37] S. A. Langer, R. E. Goldstein, and D. P. Jackson, Phys. Rev. A **46**, 4894 (1992).
- [38] R. Ewoldt, G. McKinley, and A. Hosoi (private communication).
- [39] R. M. Oliveira, J. A. Miranda, and E. S. G. Leandro, Phys. Rev. E **77**, 016304 (2008).
- [40] T. H. Bergeman, G. Erez, and H. J. Metcalf, Phys. Rev. A **35**, 1535 (1987).

Referências Bibliográficas

- [1] Sítio da internet <http://www.umn7615.espci.fr/spip.php?article250>.
- [2] D. J. Yarusso, *Adhesion Science and Engineering - The Mechanics of Adhesion*, editado por D. A. Dillard e A. V. Pocius (Elsevier, Amsterdam, 2002).
- [3] D. W. Aubrey, *Aspects of Adhesion*, editado por K. W. Allen (Elsevier, New York, 1988).
- [4] B. A. Francis e R. G. Horn, J. Appl. Phys. **89**, 4167 (2001).
- [5] D. Derks, A. Lindner, C. Creton, e D. Bonn, J. Appl. Phys. **93**, 1557 (2003).
- [6] S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, e P. Fabre, Europhys. Lett. **62**, 244 (2003).
- [7] S. Poivet, F. Nallet, C. Gay, J. Teisseire, e P. Fabre, Eur. Phys. J. E **15**, 97 (2004).
- [8] A. Lindner, D. Derks, e M. J. Shelley, Phys. Fluids **17**, 072107 (2005).
- [9] J. A. Miranda, Phys. Rev. E **69**, 016311 (2004).
- [10] J. Nase, A. Lindner, e C. Creton, Phys. Rev. Lett. **101**, 074503 (2008).
- [11] J. A. Miranda, R. M. Oliveira, e D. P. Jackson, Phys. Rev. E **70**, 036311 (2004).
- [12] A. Zosel, Colloid Polym. Sci. **263**, 541 (1985).
- [13] H. Lakrout, P. Sergot, e C. Creton, J. Adhes. **69**, 307 (1999).
- [14] Sítio da internet <http://en.wikipedia.org/wiki/Viscosity>.
- [15] P. Coussot, J. Fluid Mech. **380**, 363 (1990).
- [16] G. H. Covey e B. R. Stanmore, J. Non-Newton. Fluid Mech. **8**, 249 (1981).

- [17] R. M. Oliveira, Dissertação de Mestrado, Universidade Federal de Pernambuco, 2007.
- [18] R. E. Rosensweig, *Ferrohydrodynamics* (Cambridge University Press, Cambridge, 1985).
- [19] E. Blums, A. Cebers, e M. M. Maiorov, *Magnetic fluids* (de Gruyter, New York, 1997).
- [20] G. Bossis, S. Lacis, A. Meunier, e O. Volkova, J. Magn. Magn. Mater. **252**, 224 (2002).
- [21] Sítio da internet <http://www.kodama.hc.uec.ac.jp/project/protrude.html>.
- [22] Sítio da internet <http://www.ifs.tohoku.ac.jp/nishiyama-lab>.
- [23] M. I. Shliomis, Sov. Phys. Usp. **17**, 153 (1974).
- [24] M. I. Shliomis, in *Ferrofluids*, editado por S. Odenbach, Lecture Notes in Physics Vol. 594 (Springer, Berlin, 2002).
- [25] H. W. Müller e M. Liu, Phys. Rev. E **64**, 061405 (2001).
- [26] S. A. Lira e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **79**, 046303 (2009).
- [27] S. A. Lira e J. A. Miranda, Phys. Rev. E **80**, 046313 (2009).
- [28] S. Odenbach, J. Phys.: Condens. Matter **16**, 1135 (2004); L. M. Pop e S. Odendach, *ibid* **18**, S2785 (2006).
- [29] S. Odenbach, L. M. Pop, e A. Y. Zubarev, GAMM-Mitt. **30**, 195 (2007).
- [30] S. Odenbach e H. W. Müller, Phys. Rev. Lett. **89**, 037202 (2002).
- [31] A. Y. Zubarev e L. Y. Iskakova, Phys. Rev. E **61**, 5415 (2000); **65**, 061406 (2002).
- [32] P. Ilg, E. Coquelle, e S. Hess, J. Phys.: Condens. Matter **18**, S2757 (2006).
- [33] O. Müller, D. Hahn, e M. Liu, J. Phys.: Condens. Matter **18**, S2326 (2006).
- [34] S. Mahle, P. Ilg, e M. Liu, Phys. Rev. E **77**, 016305 (2008).
- [35] W. H. Heiser e J. A. Shercliff, J. Fluid Mech. **22**, 701 (1965).

- [36] S. Y. Molokov e J. E. Allen, J. Phys. D: Appl. Phys. **25**, 393 (1992); *ibid.* **25**, 933 (1992).
- [37] A. O. Tsebers e M. M. Maiorov, *Magnetostatic instabilities in plane layers of magnetizable fluids*, Magnetohydrodynamics **16**, 21 (1980).
- [38] S. A. Langer, R. E. Goldstein e D. P. Jackson, *Dynamics of labyrinthine pattern formation in magnetic fluids*, Phys. Rev. A **46**, 4894 (1992).
- [39] D. P. Jackson, R. E. Goldstein e A. O. Cebers, Phys. Rev. E **50**, 298 (1994).
- [40] A. O. Cebers, Magnetohydrodynamics **17**, 113 (1981).
- [41] R. B. Bird, R. Armstrong, e O. Hassager, *Dynamics of Polymeric liquids* (Wiley, New York, 1977).
- [42] S. Odenbach e H. W. Müller, J. Magn. Magn. Mater. **289**, 242 (2005).
- [43] O. T. Mefford, R. C. Woodward, J. D. Goff, *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **311**, 347 (2007).
- [44] S. Afkhami, Y. Renardy, M. Renardy, J. S. Riffle, e T. St Pierre, J. Fluid Mech. **610**, 361 (2008).
- [45] Veja também o sítio na internet da Ferrotec <http://www.ferrotec.com>.
- [46] J.-C. Bacri, A. Cebers, e R. Perzynski, Phys. Rev. Lett. **72**, 2705 (1994).
- [47] D. Rannacher e A. Engel, Phys. Rev. E **69**, 066306 (2004).
- [48] R. Perzynski e J.-C. Bacri (comunicação privada).
- [49] J. P. Embs, S. May, C. Wagner, A. V. Kityk, A. Leschhorn, e M. Lücke, Phys. Rev. E **73**, 036302 (2006).
- [50] R. Ewoldt, G. McKinley, e A. Hosoi (comunicação privada).
- [51] Sítio da internet <http://www.rmcybernetics.com/projects/experiments>.
- [52] H. Shahnazian e S. Odenbach, Int. J. Mod. Phys. B **21**, 4806 (2008).

- [53] H. Shahnazian e S. Odenbach, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 204137 (2008).
- [54] H. A. Barnes, *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **81**, 133 (1999).
- [55] J. Rabinow, *AIEE Trans.* **67**, 1308 (1948).
- [56] J. M. Ginder, in *Encyclopedia of Applied Physics*, editado por G. L. Trigg (VCH, Weinheim, 1996), Vol. 16, p. 487.
- [57] J. M. Ginder, *MRS Bull.* **23**, 26 (1998).
- [58] S. Genç e P. P. Phulé, *Smart Mater. Struct.* **11**, 140 (2002).
- [59] R. Ewoldt, G. McKinley, e A. Hosoi, *Bull. Am. Phys. Soc.* **53**, No. 15, 252 (2008).
- [60] M. Tirumkudulu, W. B. Russel, e T. J. Huang, *Phys. Fluids* **15**, 1588 (2003).
- [61] M. Ben Amar e D. Bonn, *Physica D* **209**, 1 (2005).
- [62] A. Lindner, P. Coussot, e D. Bonn, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 314 (2000).
- [63] R. Ewoldt, PhD thesis, Massachusetts Institute of Technology, 2009.
- [64] M. Igonin, PhD thesis, University Paris 7 e University of Latvia, 2004.
- [65] P. Kuzhir, M. T. López-López, e G. Bossis, *Phys. Fluids* **21**, 053101 (2009).
- [66] P. P. Phulé e J. M. Ginder, *Int. J. Mod. Phys. B* **13**, 2019 (1999).
- [67] Z. Wang e C. Holm, *Phys. Rev. E* **68**, 041401 (2003).
- [68] R. M. Oliveira, J. A. Miranda, e E. S. G. Leandro, *Phys. Rev. E* **77**, 016304 (2008).
- [69] T. H. Bergeman, G. Erez, e H. J. Metcalf, *Phys. Rev. A* **35**, 1535 (1987).
- [70] C.-Y. Chen, Y.-S. Yang, e J. A. Miranda, *Phys. Rev. E* **80**, 016314 (2009).