

Inestabilidades de línea de contacto en flujos de capas delgadas

Javier A. Diez

*Instituto de Física Arroyo Seco, Universidad Nacional del Centro
de la Provincia de Buenos Aires, Pinto 399, 7000, Tandil, Argentina*

L. Kondic

*Department of Mathematical Sciences and Center for Applied Mathematics and Statistics
New Jersey Institute of Technology, Newark, NJ 07102*

Se presentan resultados computacionales sobre la inestabilidad de la línea de contacto de una capa líquida delgada que escurre sobre un plano inclinado bajo la acción de la gravedad. En el marco de la aproximación de lubricación, mostramos que la naturaleza del patrón emergente para un fluido mojante depende fuertemente del ángulo de inclinación. Grandes ángulos conducen a la formación de riachos en forma de dedos, mientras que pequeños ángulos resultan en patrones tipo diente de sierra. En todos los casos se consigue un cobertura total del sustrato. También estudiamos el desarrollo de la inestabilidad para tiempos largos, y la interacción no-lineal de los modos en dominios de dimensiones comparables a las experimentales.

We present computational results about the contact line instability of a thin liquid film flowing down on inclined plane, under the action of gravity. Within the lubrication approximation, we show that the nature of the emerging pattern for a wetting fluid strongly depends on the inclination angle. Large angles lead to the formation of finger-shaped rivulets, while smaller ones yield saw-tooth patterns. In all the cases, complete coverage of the surface is obtained. We study the instability for late times, as well as the non-linear mode interaction in domains comparable to the experimental ones.

I. INTRODUCCIÓN

El proceso de cobertura de superficies sólidas por la aplicación de capas líquidas delgadas es de interés en varias ramas de la ciencia y de la técnica. En estos procesos, el líquido viscoso puede ser motorizados por fuerzas gravitacionales [1-7], fuerzas centrífugas ('spin coating' [8]), o gradientes térmicos (flujos de Marangoni [9]). En muchas situaciones, el frente de la capa líquida (donde confluyen el líquido, la superficie sólida y el aire) se vuelve inestable, de manera que el flujo se desarrolla ya sea formando riachos con forma de dedos, o un frente irregular con estructura de diente de sierra.

En este trabajo, nos concentramos en quizás el más simple de estos problemas: el flujo sobre un plano inclinado. Los primeros experimentos fueron realizados por Huppert [10], quien estudió el derrame de un volumen fijo de fluido viscoso, liberado en el extremo superior del plano. Éstos mostraron claramente cómo la línea de contacto, inicialmente recta, se vuelve inestable frente a perturbaciones transversales. Experimentos posteriores han mostrado que las propiedades de mojado juegan un rol importante en el desarrollo de la inestabilidad: para fluidos con mojabilidad (casi) completa se obtuvieron patrones triangulares y total cobertura del sustrato, mientras que con fluidos parcialmente mojantes se observaron patrones tipo diente de sierra con cobertura parcial de la superficie sólida [11]. Recientemente, se han realizado experiencias en un arreglo experimental modificado que permitió estudiar el flujo continuo de una capa de espesor

dado [7]. Esta inestabilidad es más fácil de estudiar, ya que se han eliminado las complicaciones debidas al adelgazamiento del fluido cuando su volumen es constante. Se evidenció que, para un dado fluido, cambios en la inclinación del plano afectan significativamente la forma de los patrones emergentes. Para grandes ángulos de inclinación se observaron patrones con digitación, mientras que para pequeños ángulos se obtuvieron patrones tipo diente de sierra [7]. Sin embargo, queda aún pendiente una descripción completa sobre cómo la interrelación entre las propiedades de mojado del fluido y las fuerzas motoras determina la forma del patrón emergente y el grado de cobertura de la superficie.

Nuestro tratamiento del problema es computacional: resolvemos numericamente la ecuación diferencial parcial que gobierna el movimiento del fluido en la aproximación de lubricación para un fluido completamente mojante. Importantes mejoras en los métodos computacionales [12] nos permite, por primera vez, predecir con precisión la dinámica de grandes sistemas, en dominios computacionales comparables a los experimentales.

II. FORMULACIÓN DEL PROBLEMA

Definimos nuestro sistema de coordenadas de la siguiente manera: el plano xy coincide con la superficie inclinada un ángulo α respecto de la horizontal; el eje x está orientado hacia abajo, el eje y es transversal (horizontal), y el eje z es perpendicular al plano. Promediando en la dirección z , y asumiendo la incompresibilidad del fluido,

se obtiene la siguiente ecuación de difusión no-lineal de cuarto orden para la altura $h(x, y)$ (ver p. ej. [2]):

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \nabla \cdot [h^3 \nabla \nabla^2 h] - D(\alpha) \nabla \cdot [h^3 \nabla h] + \frac{\partial h^3}{\partial x} = 0, \quad (1)$$

donde $\nabla = (\partial_x, \partial_y)$, $D(\alpha) = (3Ca)^{1/3} \cot(\alpha)$, y Ca es el número capilar. El segundo término da cuenta de la tensión superficial, mientras que los dos últimos términos corresponden a las componentes normal y paralelas de la gravedad, respectivamente. Aquí, $Ca = \mu U / \gamma$, donde μ es la viscosidad del fluido, γ es la tensión superficial aire-líquido, y U es la escala de velocidad. La altura del líquido se escala con h_c , el espesor lejos de la línea de contacto; el balance entre las fuerzas viscosas y la gravedad en esa región lejana da $U = \rho g h_c^2 \sin \alpha / 3\mu$. Luego, escalamos las coordenadas en el plano con $x_c = (h_c \gamma / \rho g \sin \alpha)^{1/3}$, y usamos la escala de tiempo natural $t_c = x_c / U$ (g es la gravedad, y ρ la densidad del líquido).

El análisis de estabilidad lineal (LSA, por sus siglas en inglés) fue hecho por primera vez para el flujo sobre una pared vertical [13], y luego para el caso general de un plano inclinado [2,14]. Estos trabajos mostraron que existe un rango de modos inestables, y que las longitudes de onda más cortas son estabilizadas por la tensión superficial. Si bien los resultados experimentales muestran un acuerdo básico con el LSA (p. ej., la separación observada entre las puntas de los patrones concuerda razonablemente bien con la longitud de onda de máximo crecimiento $\lambda_m \approx 16$), existen aún un buen número de cuestiones no aclaradas. Quizás la más importante es que el LSA está limitado a tiempos cortos (en una aproximación lineal), de modo que aspectos como los relacionados con la interacción no-lineal de modos no pueden analizarse. Algunas de estas cuestiones fueron analizadas mediante la resolución numérica de la ecuación diferencial parcial [15-17]. Esas simulaciones proveen una mejor visión sobre algunas de las cuestiones abiertas; sin embargo, los dominios angostos que ellas emplearon no permitieron una comparación directa con los resultados experimentales.

Notemos, en primer lugar, que todos los métodos teóricos y/o computacionales requieren algún mecanismo de regularización, ya sea la incorporación de una pequeña capa de fluido delante de la línea de contacto (film precursor), o el relajamiento de la condición de contorno de no-deslizamiento en la interfase líquido-sólido [18]. En este trabajo usamos el modelo de film precursor, y referimos al lector a nuestro trabajo previo donde analizamos en detalle éste y otros métodos de regularización [12].

La ec. (1) se discretiza en una grilla cartesiana fija en el dominio rectangular $[L_x, L_y]$. Los detalles del método numérico se presentaron en trabajos previos [12,19-21]. Aquí, notamos que se hace uso de una discretización especial del término de cuarto orden en la ec. (1) ('positivity preserving scheme'); este método evita que la solución se

vuelva negativa, aún si el cálculo se realiza en una grilla gruesa. Las condiciones de contorno en la dirección x son de altura fija y derivada cero en $x = 0, L_x$: $h(0, y) = 1, h(L_x, y) = b, h_x(0, y) = h_x(L_x, y) = 0$, donde b es el espesor del film precursor. En la dirección y usamos: $h_y(x, 0) = h_y(x, L_y) = h_{yyy}(x, 0) = h_{yyy}(x, L_y) = 0$. La configuración inicial es la bien conocida solución de onda viajera resultante de las simulaciones 1D [13,14], cuyo frente ubicamos en $x_{f0} \approx 7$, y perturbamos en la dirección y . Estas perturbaciones modelan las desviaciones respecto del frente recto, tal como pueden ocurrir en una situación experimental. Luego, el frente perturbado viene dado por:

$$x_f(y) = x_{f0} - \sum_{i=1}^N A_i \cos(2\pi y / \lambda_i), \quad (2)$$

donde $A_i (\leq 0.1)$ es la amplitud del i -ésimo modo, y $\lambda_i = 2L_y / i$, está en concordancia con las condiciones de contorno. Notamos que el efecto de perturbaciones en la interacción fluido-sólido también fue analizada recientemente [2,5,19] con el objetivo central de comprender las inestabilidades para pequeños ángulos de inclinación. No consideramos aquí esta clase de perturbaciones, y nos concentramos en los efectos que perturbaciones en la línea de contacto misma puedan tener en el desarrollo de la inestabilidad.

III. RESULTADOS

Esta sección está organizada de la siguiente manera. Primero, presentamos los resultados obtenidos en un dominio angosto, donde la línea de contacto es perturbada por un solo modo. Estudiamos la influencia del ángulo de inclinación, en la forma de los patrones, y en la tasa de crecimiento de éstos para tiempos largos. En segundo lugar, mostramos los resultados para dominios grandes, de tamaños comparables a los experimentales, los cuales permiten un mejor entendimiento de la interacción no-lineal de modos. El análisis de otros aspectos del problema, tales como perfiles longitudinales y transversales de los 'dedos' (o riachos), influencia del espesor del film precursor en el desarrollo de la inestabilidad, o desarrollo de la inestabilidad en flujos con volumen constante, se reportan en otros trabajos [20,21].

A. Evolución de un solo modo

Las simulaciones en dominios angostos se realizan con $L_y = \lambda = 16$, comparable con λ_m . La Fig. 1 muestra instantáneas de la forma adoptada por la línea de contacto. Para $D = 0$ (Fig. 1a), la perturbación inicial desarrolla un dedo largo caracterizado por lados casi paralelos. A

medida que D aumenta, los patrones son mucho más anchos con lados más y más oblicuos (Figs. 1b - 1d); esta tendencia está de acuerdo con los resultados experimentales [7]. Esto se debe a que la componente normal de la gravedad genera un derrame lateral más importante a medida que α decrece. El análisis de la evolución temporal de estos resultados muestra que, para tiempos cortos, la longitud de los patrones crece exponencialmente con una tasa de crecimiento que es función de D , cuantitativamente de acuerdo con los resultados del LSA [21]. Para tiempos grandes, la tasa de crecimiento disminuye, tal como se observa en los experimentos de volumen constante [1]; lamentablemente, las tasas de crecimiento no fueron reportadas en [7], que es la única referencia existente para el caso de flujo constante. Las simulaciones muestran que el crecimiento se vuelve más lento que exponencial; también, de la Fig. 1 puede verse que el crecimiento se desacelera para tiempos largos a medida que D aumenta.

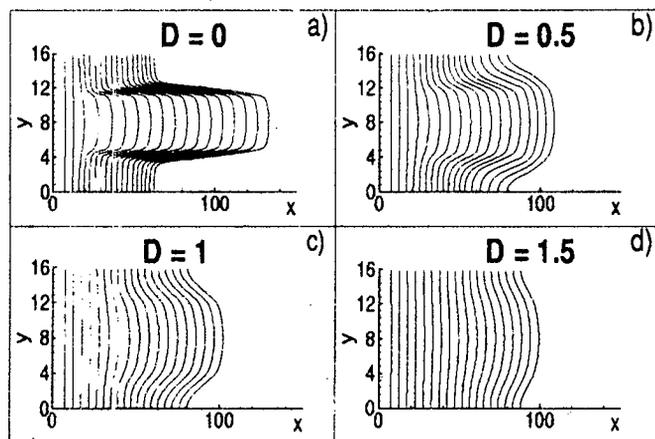


FIG. 1. Instantáneas de la forma de la línea de contacto a intervalos $\delta t = 5$ ($t_{max} = 85$) para el flujo en un plano vertical ($D = 0$) (a), y un plano inclinado ($D > 0$) (b-d). Usamos $b = 0.01$, $\Delta x = 0.2$, $\Delta y = 0.25$, $L_x = 40$, y $A_0 = 0.1$.

Con el objeto de aclarar los aspectos generales del flujo, extendemos las simulaciones mostradas en la Fig. 1 a tiempos muy largos. La Fig. 2 muestra la longitud L del patrón versus t , para distintos valores de $D(\alpha)$. Para $D = 0$, el crecimiento cambia de exponencial a lineal, de acuerdo con el argumento cualitativo dado en [3]. Para D grande, sin embargo, el resultado es muy diferente. Después de un crecimiento exponencial inicial, y un crecimiento lineal más lento para tiempos intermedios, el crecimiento *satura*. Como era de esperar, la longitud saturada del patrón es más pequeña para D grande, ya que el incremento de D reduce el grado de inestabilidad. Estudios de convergencia adicionales mostraron que el efecto de saturación no se ve modificado ante un refinamiento de la grilla.

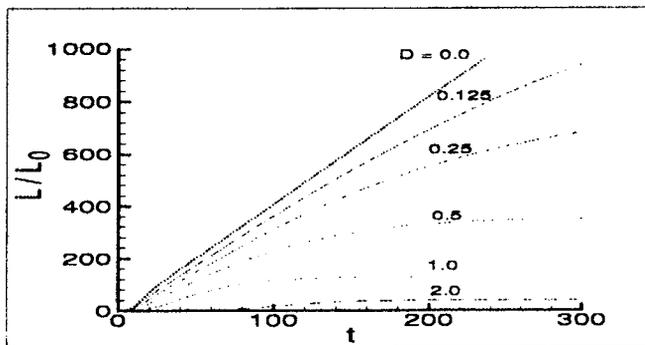


FIG. 2. Longitud de los patrones emergentes para diferentes D 's. El resto de los parámetros son como en la Fig. 1, excepto el tamaño de la caja en la dirección x , que es: $L_x = 200, 200, 100, 40$ para $D = 0, 0.5, 1.0, 2.0$, respectivamente.

Debe notarse que recientemente [16] otros autores han reportado resultados numéricos que muestran *saturación* en el crecimiento para el flujo sobre una pared *vertical* ($D = 0$). Nosotros hemos realizado simulaciones adicionales para hallar la razón de la discrepancia con los resultados reportados aquí. Hay dos diferencias importantes con nuestras simulaciones: el espesor b del film precursor, el cual es mucho mayor en [16], y el tamaño del dominio computacional en la dirección x . Encontramos que: (a) mayores valores de b conducen a una desaceleración del crecimiento para tiempos largos, y (b) el uso de un L_x más pequeño puede modificar el crecimiento, pues en tal caso sólo una pequeña porción del cuerpo principal del fluido se mantiene dentro del dominio. Más detalles sobre este punto se dan en [21].

B. Interacción no lineal de modos

Tipicamente, los experimentos de laboratorio están caracterizados por dominios anchos, mucho mayores que λ_m . También, la línea de contacto en $t = 0$ sufre una perturbación tipo 'ruido blanco', sin una longitud de onda característica. Para simular la situación experimental de la manera más realística posible, realizamos simulaciones en dominios que se comparan bien con los experimentales, y modelamos el ruido perturbando la línea de contacto con un número grande de modos, N , caracterizados por pequeñas amplitudes distribuidas al azar.

La Fig. 3 muestra la inestabilidad de la línea de contacto para el flujo sobre una pared vertical. La parte superior muestra instantáneas de la forma de los patrones; la parte inferior da una visión 3D del fluido a tiempo grande. Vemos que, en concordancia con el LSA y los experimentos, las longitudes de onda más cortas desaparecen rápidamente, ya que éstas son linealmente estables. Los λ 's emergentes (separación entre los riachos) son cercanos al λ_m predicho por el LSA. Para tiempos más largos, se forman riachos en forma de dedos, tal como los

observados experimentalmente en [7]. Una característica notable de los resultados mostrados en la Fig. 3 es la natural no-uniformidad de los λ 's emergentes. El sistema escoge la configuración más favorable que resulta del acoplamiento no-lineal entre los modos inicialmente presentes, modificada por las limitaciones impuestas por el tamaño finito del sistema. Esta falta de uniformidad también fue observada experimentalmente, tanto en los casos de flujo constante [7] como en los de volumen constante (p. ej., en [1]). Asimismo, notamos que la protuberancia ('bump') capilar en las puntas es mucho mayor que en las raíces. Una análisis más detallado de los resultados [20,21] muestra un acuerdo cuantitativo con los perfiles experimentales.

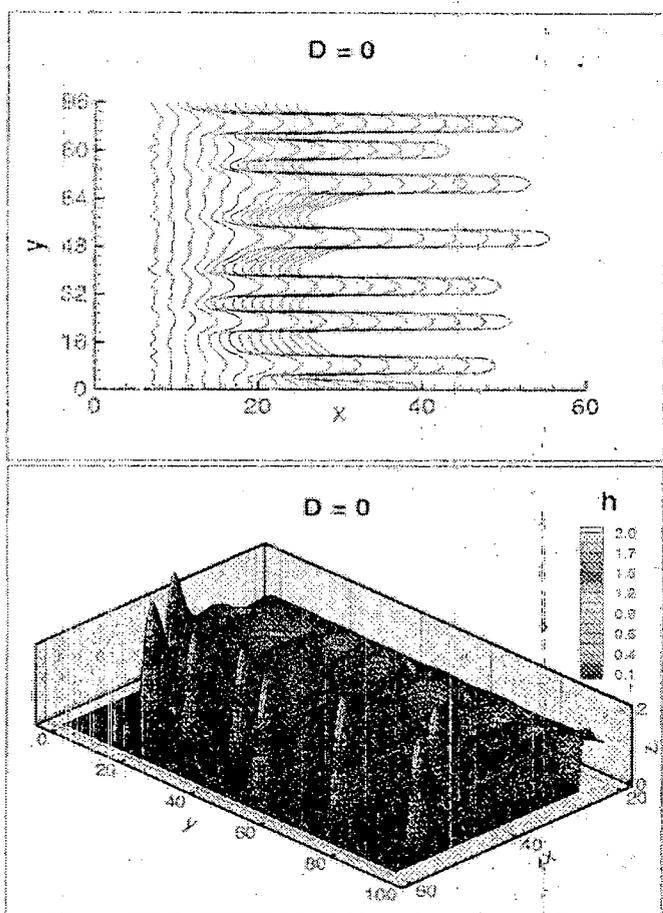


FIG. 3. Instantáneas de la línea de contacto a intervalos $\delta t = 2$ ($t_{max} = 28$) para el flujo en un plano vertical (arriba) y perfiles 3D del fluido para $t = 30$ (abajo) ($L_y = 96$, $N = 50$, $\Delta y = 0.5$). Todos los otros parámetros son como en la Fig. 1.

La Fig. 4 muestra los resultados para $D = 1$. Los patrones emergentes se asemejan fuertemente a patrones triangulares, tal como los observados en [7]. El crecimiento de los patrones es más lento que en el caso $D = 0$, y las separaciones y los anchos se han incrementado. Además, las raíces de los patrones han colapsado casi a un

punto, un aspecto también observado en los experimentos. A partir del gráfico 3D para este caso, notamos que los bordes capilares son mucho menos pronunciados que en el caso de $D = 0$ en un plano vertical (ver Fig. 3).

Para tiempos grandes extraemos valores promedios de la distancia λ entre puntas, y del ancho W (medido a mitad de camino entre una punta y su raíz). Con el fin de asegurarnos que las simulaciones mostradas en las Figs. 3 y 4 son buenos casos representativos, realizamos simulaciones adicionales usando una semilla diferente para el generador de números al azar, y diferentes tamaños de dominios ($L_y = 48, 192$). Así, obtenemos,

$$\lambda_{D=0} = 11.8 \pm 2.6, \quad \lambda_{D=1} = 16.0 \pm 2.7, 1.0; \quad (3)$$

$$W_{D=0} = 5.5 \pm 0.4, \quad W_{D=1} = 11.2 \pm 1.0; \quad (4)$$

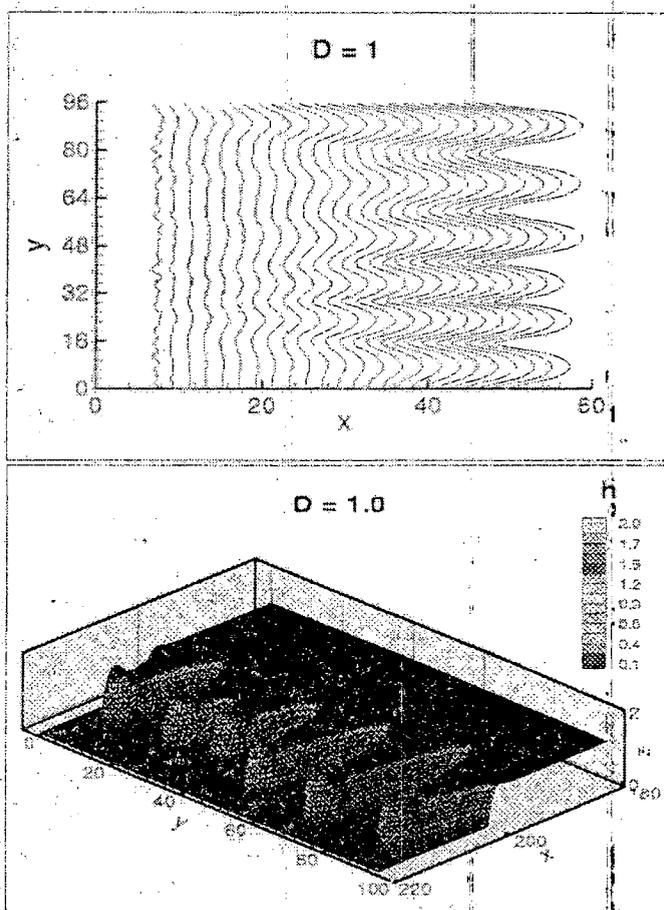


FIG. 4. Instantáneas de la línea de contacto a intervalos $\delta t = 2$ ($t_{max} = 46$) para el flujo en un plano inclinado ($D = 1$) (arriba) y perfiles 3D del fluido para $t = 200$ (abajo). Todos los otros parámetros son como en la Fig. 3.

Se reportan tanto el promedio como la desviación estándar. Estos resultados están en buen acuerdo con el LSA, el cual además predice un incremento de λ_m para D

creciente [2,14]. Nótese que los anchos aumentan también significativamente.

A los efectos de comparar directamente los resultados computacionales con los experimentales, procedemos ahora a modelar una particular situación experimental. Para ello escogemos el "Fluido B" reportado en la Ref. [7], por ser éste casi completamente mojante. Este fluido (80% glicerina en agua) está caracterizado por: densidad $\rho = 1.21 \text{ g/cm}^3$, viscosidad cinemática $\nu = 0.69 \text{ cm}^2/\text{s}$, y tensión superficial $\gamma = 66 \text{ dyn/cm}$. Los ángulos que reproducimos aquí son $\alpha = 90^\circ$, 27.9° y 13.9° . El espesor del fluido lejos de la línea de contacto no es reportado directamente, sino que se da el número de Reynolds correspondiente, definido como $Re = Q/\nu$, donde Q es el caudal. Esto da $h_c = (3Re\nu^2/(g \sin \alpha))^{1/3}$, de modo que obtenemos $h_c = 0.057, 0.074, 0.092 \text{ (cm)}$ para $\alpha = 90^\circ, 27.9^\circ, 13.9^\circ$, respectivamente. De esta manera, podemos calcular los valores de x_c, t_c y D para estos tres ángulos. Los resultados se muestran en la Tabla I en la que puede apreciarse que el acuerdo entre los valores obtenidos de las simulaciones y los experimentales es muy bueno. Este acuerdo muestra que es posible realizar los cálculos con valores relativamente grandes del film precursor ($b = 10^{-2}$), y aún así poder obtener resultados realísticos, que se comparan muy bien con los experimentales.

IV. RESUMEN

La principal conclusión de nuestro trabajo es que la forma de los patrones resultantes de la inestabilidad de la línea de contacto no está necesariamente relacionada con la total o parcial cobertura del sustrato. En todas nuestras simulaciones, resulta una cobertura total de la superficie; sin embargo, la forma de los patrones depende fuertemente del ángulo de inclinación. Debe notarse que, para clarificar completamente la interrelación entre las propiedades de mojado y la gravedad, es necesario un mayor trabajo tanto experimental como teórico/computacional. Nuestros cálculos proveen un esfuerzo en esa dirección.

α	D	x_c	λ_{sim}	λ_{exp}	W_{sim}	W_{exp}
90°	0	0.15	1.8 ± 0.4	2.0 ± 0.3	0.8 ± 0.1	0.7 ± 0.1
27.9°	0.67	0.21	3.2 ± 0.4	3.0 ± 0.4	2.1 ± 0.2	2.0 ± 0.2
13.9°	1.34	0.28	4.5 ± 0.5	4.0 ± 0.5	3.2 ± 0.2	3.0 ± 0.3

TABLE I. La tabla da ángulos de inclinación α , el parámetro adimensional D , distancia característica calculada, x_c , longitud de onda de los patrones obtenida de la simulación, λ_{sim} , longitud de onda medida experimentalmente, λ_{exp} [7], ancho del patrón obtenido de la simulación, W_{sim} , y anchos medidos experimentalmente, W_{exp} [7]. Los resultados de las simulaciones muestran el promedio y la desviación estándar; los resultados experimentales dan el promedio y la incerteza reportada/estimada. Todas las longitudes están en centímetros.

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen a Andrea Bertozzi quien nos permitió iniciar este proyecto en el Mathematics Department of Duke University, NC, USA. J. A. D. agradece al Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas (CONICET-Argentina), y L. K. agradece la financiación del NJIT a través del subsidio No. 421210.

- [1] Jerrett J. M. & Bruyn, J. R. de, Phys. Fluids A 4, 234 (1992).
- [2] Bertozzi, A. L. & Brenner, M. P., Phys. Fluids 9, 530 (1997).
- [3] Brenner, M. P., Phys. Rev. E 47, 4597 (1993).
- [4] I. Veretennikov, A. Indekina, and H.-C. Chang, J. Fluid Mech. 373, 81 (1998).
- [5] Ye, Y. & Chang, H., Phys. Fluids 11, 2494 (1999).
- [6] L. M. Hocking, W. R. Debler, and K. E. Cook, Phys. Fluids 11, 307 (1999).
- [7] M. F. G. Johnson *et al.*, J. Fluid. Mech. 394, 339 (1999); M. F. G. Johnson, Ph. D. Thesis, Northwestern University (1997).
- [8] N. Fraysse and G. M. Homsy, Phys. Fluids 6, 1491 (1994).
- [9] A. M. Cazabat *et al.*, Nature 346, 824 (1990).
- [10] Huppert, H., Nature, 300, 427 (1982).
- [11] Silvi, N. & Dussan, E. B., Phys. Fluids 28, 5 (1985).
- [12] Diez, J. A., Kondic, L. & Bertozzi, A. L., Phys. Rev. E. (en prensa)
- [13] Troian, S. M., Herbolzheimer, E., Safran, S. A. & Joanny, J. F., Europhys. Lett. 10, 25 (1989).
- [14] Spaid, M. A. & Homsy, G. M., Phys. Fluids 8, 460 (1996).
- [15] Schwartz, L. W., Phys. Fluids A 1, 443 (1989).
- [16] Eres, M. H., Schwartz, L. W. & Roy, R. V., Phys. Fluids 12, 1278 (2000).
- [17] Moyle, D. T., Chen, M. S. & Homsy, G. M., Int. J. Mult. Flow, 25, 1243 (1999).
- [18] Dussan V., E. B., J. Fluid Mech. 77, 665 (1976).
- [19] Kondic, L. & Bertozzi, A. L., Phys. Fluids, 11, 3560 (1999).
- [20] Diez, J. A. & Kondic, L., enviado a Phys. Rev. Lett.
- [21] Kondic, L. & Diez, J. A., en preparación.