



SIMULAÇÕES DE DECOMPOSIÇÃO ESPINODAL HIDRODINÂMICA UTILIZANDO O MÉTODO DE BOLTZMANN PARA REDES

Antonio Vinicius Gomes Teixeira

LMPT, Departamento de Engenharia Mecânica, UFSC
Trindade, Florianópolis, Santa Catarina
CEP 88040-900, Caixa Postal 476
vinicius@lmpt.ufsc.br

Rodrigo Surmas

LMPT, Departamento de Engenharia Mecânica, UFSC
surmas@lmpt.ufsc.br

Paulo Cesar Philippi

LMPT, Departamento de Engenharia Mecânica, UFSC
philippi@lmpt.ufsc.br

Resumo: Misturas binárias separam-se em dois fluidos imiscíveis quando resfriadas a temperaturas abaixo da temperatura crítica. Uma vez que este processo se inicia, os dois domínios crescem e área interfacial decresce com o tempo de acordo com uma lei potencial. Este processo, conhecido como decomposição espinodal, é importante nas indústrias metalúrgica, de petróleo e de alimentos. Neste trabalho, o método de Boltzmann para redes (LBM), baseado na discretização da equação contínua de Boltzmann, é usado para estudar a decomposição espinodal. Devido às suas características mesoscópicas, o método de Boltzmann para redes é apropriado para descrição macroscópica de interações microscópicas, como dinâmica interfacial e fenômenos de capilaridade. Os efeitos do tamanho do domínio e da viscosidade dos fluidos são estudados através de simulações bidimensionais. Os resultados encontrados apresentaram grande concordância com resultados experimentais e com outros trabalhos. A viabilidade de uso do presente método para simulação de escoamentos de bifásicos com dois fluidos é avaliada.

Palavras-chave: método de Boltzmann para redes, decomposição espinodal, fluidos imiscíveis.

1. INTRODUÇÃO

Quando uma mistura de dois fluidos imiscíveis é submetida a uma temperatura abaixo da temperatura crítica ou espinodal, ela se separa em duas fases com diferentes composições. Este fenômeno é conhecido como decomposição espinodal e é um processo de relevância tanto intelectual como industrial. Em misturas simétricas ou críticas, onde a concentração dos fluidos é igual, as fases formam domínios interconectados, que em tempos avançados produzem uma estrutura bicontínua, com interfaces bem definidas. Depois de formados os domínios, evidências teóricas e experimentais mostram que o sistema evolui com o tempo t obedecendo uma lei de escala invariável, ou seja, um fator de escala pode ser aplicado para se obter a configuração do sistema em qualquer instante. Desta forma, o tamanho característico $R(t)$ cresce de acordo com uma lei potencial, $R(t) \sim t^\alpha$ e a área interfacial $A(t)$ decresce, também de acordo com uma lei potencial, da forma $A(t) \sim t^\beta$. Acredita-se que os expoentes α e β sejam universais (González-Segredo, 2003), dependendo apenas do mecanismo de crescimento e não dos detalhes de cada sistema particular.

A decomposição espinodal tem sido estudada através de análises analíticas, experimentais e numéricas. Pelo fato de envolver vários mecanismos que agem simultaneamente e em diferentes escalas de tempo e tamanho, o estudo da decomposição espinodal serve de teste para a validação de métodos numéricos de simulação de escoamentos complexos.

O método de Boltzmann para redes é uma aproximação mesoscópica para simular escoamento de fluidos, baseado na teoria cinética dos gases. Ao invés de determinar a solução para as equações de Navier-Stokes, a equação de Boltzmann discretizada é resolvida. Este método é eficiente para simular o comportamento hidrodinâmico de fluidos. Ele combina implementação relativamente fácil com eficiência dos algoritmos devido à simplicidade do operador de colisão Boltzmann-BGK.

O crescimento dos domínios e a diminuição da área interfacial, com o tempo, são estudados. Os resultados encontrados estão de acordo com outros trabalhos e com previsões teóricas.

2. O MÉTODO DE BOLTZMAN PARA REDES

O método de Boltzmann para redes pode ser interpretado como uma forma de resolver por diferenças finitas a aproximação de Bhatnagar-Gross-Krook (BGK) da equação de transporte de Boltzmann. Este método surgiu no final da década de 80 como uma extensão dos modelos de gás em redes ou Lattice Gas Automata (LGA). Os modelos de gás em redes fazem uso de um mundo microscópico simplificado, onde as partículas que constituem o fluido ocupam os vértices de uma rede regular, também conhecidos como sítios. Estas partículas possuem velocidades discretas, que apontam para os sítios vizinhos. Após um intervalo de tempo, as partículas movem-se para os nós vizinhos, de acordo com sua velocidade, sendo este processo chamado de propagação. Então as partículas colidem e mudam sua velocidade na fase chamada de colisão. A simulação prossegue em uma alternância de colisão e propagação.

O maior inconveniente dos modelos de gás em redes é a presença de ruído. Para evitar este ruído, é necessário fazer médias sobre redes muito grandes e durante um longo tempo. O modelo de Boltzmann para redes contorna este problema pois simula diretamente a média de ocupação de um sítio. Neste caso a grandeza calculada $f_i(x,t)$ é um número real entre 0 e 1 que representa a probabilidade de se encontrar uma partícula com determinada velocidade em um determinado sítio, sendo chamada de função distribuição de velocidades.

A forma geral da equação de Boltzmann discreta é mostrada na Equação 1, onde f representa a função distribuição e Ω_i representa o operador de colisão.

$$f_i(\mathbf{X} + \mathbf{c}_i \Delta T, T + \Delta T) - f_i(\mathbf{X}, T) = \Omega_i \quad (1)$$

A função de distribuição f depende da densidade ρ e da velocidade \mathbf{u} locais. Estes são os momentos de primeira e segunda ordem, respectivamente, sendo mostrados nas Equações 2 e 3.

$$\rho(\mathbf{X}, T) = \sum_i f_i \quad (2)$$

$$\mathbf{u}(\mathbf{X}, T) = \frac{\sum_i f_i \mathbf{c}_i}{\rho(\mathbf{X}, T)} \quad (3)$$

Com o intuito de simular a interação de dois fluidos, utilizou-se neste trabalho um modelo proposto por Santos *et al.* (2003), que é baseado em mediadores de campo. Os mediadores são partículas sem massa que são emitidas dos sítios e cujo único efeito é o de inverter a velocidade das partículas, simulando o efeito de campo de longa distância. Quatro funções de distribuição são utilizadas, cada uma representando as partículas dos fluidos diferentes e os respectivos mediadores, $N_i^\psi(\mathbf{X}, T)$ e $M_i^\psi(\mathbf{X}, T)$, onde $\psi=r,b$ representa o tipo do fluido. A dinâmica dos mediadores pode ser descrita através da seguinte equação.

$$M_i^\psi(\mathbf{X} + \mathbf{c}_i, T + 1) = \frac{\rho^\psi(\mathbf{X}, T)}{\rho^r(\mathbf{X}, T) + \rho^b(\mathbf{X}, T)} \quad (4)$$

A velocidade dos mediadores é definida como

$$\mathbf{u}^m(\mathbf{X}, T) = \sum_i M_i^r(\mathbf{X}, T) - M_i^b(\mathbf{X}, T). \quad (5)$$

Lembrando que as interações de longa distancia são representadas por mudanças na velocidade das partículas, as velocidades modificadas são definidas pela ação dos mediadores, como segue,

$$\mathbf{v}^r = \mathbf{u}^r - A \frac{\mathbf{u}^m}{|\mathbf{u}^m|} \quad (6)$$

$$\mathbf{v}^b = \mathbf{u}^b - A \frac{\mathbf{u}^m}{|\mathbf{u}^m|} \quad (7)$$

onde o parâmetro A está relacionado com a intensidade da interação, e, conseqüentemente, com a tensão interfacial.

A interação entre as partículas dos fluidos é representada por um operador de colisão dividido, parte monofásico, parte bifásico. A parte monofásica descreve as colisões entre as partículas do mesmo fluido entre si, enquanto a parte bifásica representa as colisões entre as partículas de fluidos diferentes. Considerando um escoamento monofásico, o principal efeito da colisão é o de relaxar a distribuição N_i para uma distribuição de equilíbrio prescrita N_i^{eq} , que pode ser descrita por parâmetros macroscópicos como densidade e velocidade, utilizando o operador BGK

$$\Omega_i^{\alpha\beta} = \frac{N_i^{eq} - N_i}{\tau^{\alpha\beta}} \quad (8)$$

onde $\tau^{\alpha\beta}$ é o tempo de relaxação, estando relacionado com a viscosidade do fluido a ser simulado.

A dinâmica das partículas, para um escoamento bifásico, pode ser descrita da seguinte maneira,

$$N_i^\psi(\mathbf{X} + \mathbf{c}_i, T + 1) = N_i^\psi(\mathbf{X}, T) + \left(\frac{\rho^\psi}{\rho^r + \rho^b} \right) \Omega_i^{\psi\psi}(\mathbf{X}, T) + \left(\frac{\rho^{\bar{\psi}}}{\rho^r + \rho^b} \right) \Omega_i^{\psi\bar{\psi}}(\mathbf{X}, T) \quad (9)$$

onde o operador de monofásico $\Omega_i^{\psi\psi}$ é aquele mostrado na Equação 8. Apesar de o operador de colisão bifásico também ser escrito de acordo com a Equação 8, com $\psi=r, b$ e $\bar{\psi} \neq \psi$, a distribuição de equilíbrio deve ser calculada com as velocidades modificadas de acordo com as Equações 6 e 7. A utilização de tempos de relaxação diferentes para cada fluido permite a simulação de fluidos com viscosidades diferentes. O tempo de relaxação τ^{rr} refere-se às interações entre as partículas do fluido molhante, τ^{bb} às interações entre as partículas de fluido não-molhante e τ^{rb} às partículas na interface.

3. DECOMPOSIÇÃO ESPINODAL

Depois das interfaces atingirem sua configuração de menor espessura através de difusão, a estrutura binária que é formada apresenta similaridade no tempo. Isto leva à *hipótese de escala dinâmica* que afirma que, após certo tempo, quando a difusão não é mais importante, existe um único comprimento característico que cresce com o tempo, tal que a estrutura geométrica é independente do tempo quando este comprimento é utilizado como fator de escala desta estrutura. Os parâmetros que influenciam o comprimento característico são as viscosidades dos fluidos, a tensão interfacial e a densidade dos fluidos, pois os únicos mecanismos envolvidos no crescimento do comprimento característico são a dissipação viscosa, inércia dos fluidos e forças de capilaridade.

Foram realizadas simulações para determinar os efeitos destes parâmetros e para determinar o crescimento do comprimento característico com o tempo. O decréscimo da área interfacial também é simulado e os resultados são discutidos nas próximas seções.

3.1 Crescimento dos domínios

Para avaliar o comprimento característico $R(t)$ que satisfaça à hipótese de escala dinâmica, um parâmetro de ordem Ψ é definido como a diferença entre a densidade local dos fluidos, como mostrado na Equação 10.

$$\Psi(\mathbf{X}, T) = \rho^r(\mathbf{X}, T) - \rho^b(\mathbf{X}, T) \quad (10)$$

O comprimento característico $R(t)$ será a primeira raiz ou zero da função de correlação do parâmetro de ordem, definida na Equação 11, de acordo com (Bray, 1994). As médias são tomadas sobre cascas de raio r .

$$G(r, t) = \langle \Psi(r)\Psi(0) \rangle - \langle \Psi \rangle^2 \quad (11)$$

Na Figura 1 é mostrada a evolução de $R(t)$ com o tempo. Os parâmetros utilizados na simulação foram $\tau^{rr} = 1,0$, $\tau^{bb} = 1,0$, $\tau^{rb} = 1,0$, $A = 0,4$, em uma rede quadrada com 512^2 sítios e uma distribuição inicial randômica de ρ^r e ρ^b . O expoente encontrado está em concordância com predição teórica proposta por (Furukawa, 1985) e com outros trabalhos (Chin e Coveney, 2002), (Alexander *et al.*, 1993) e (González-Segredo *et al.*, 2003), que prevêm $R(t) \sim t^{2/3}$. Uma seqüência de imagens representando a distribuição de densidades em tempos de simulação diferentes é mostrada na Figura 2.

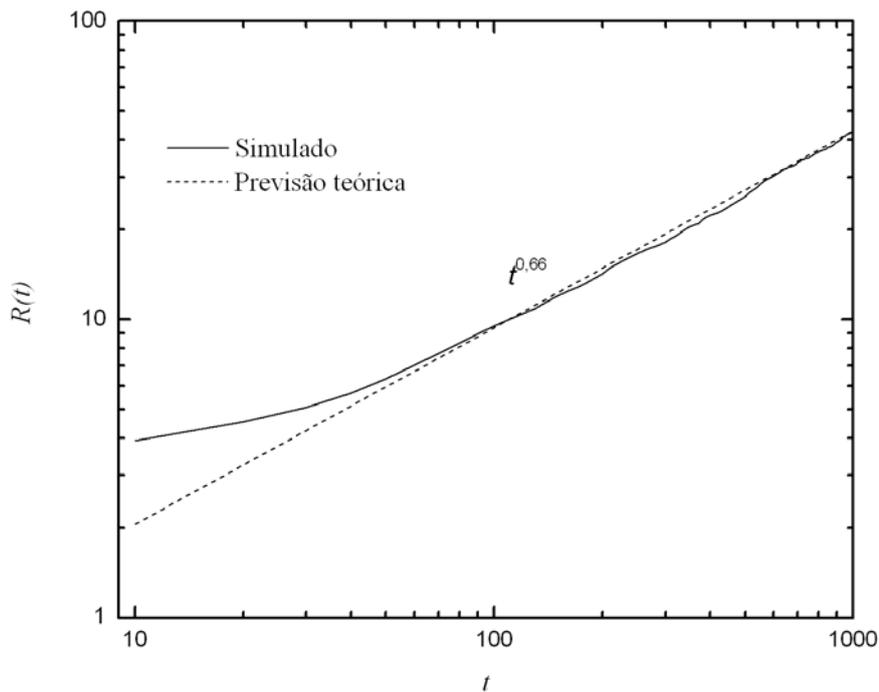


Figura 1: Evolução do comprimento característico $R(t)$ com o tempo. O desvio no começo do gráfico representa a fase inicial, onde não há crescimento e é uma fase basicamente difusiva.

Para garantir que o expoente α está bem definido e não depende de um arranjo particular favorável do sistema inicial, a simulação foi rodada com os mesmos parâmetros, variando-se apenas a distribuição de densidades inicial. Os resultados encontrados foram os mesmos.

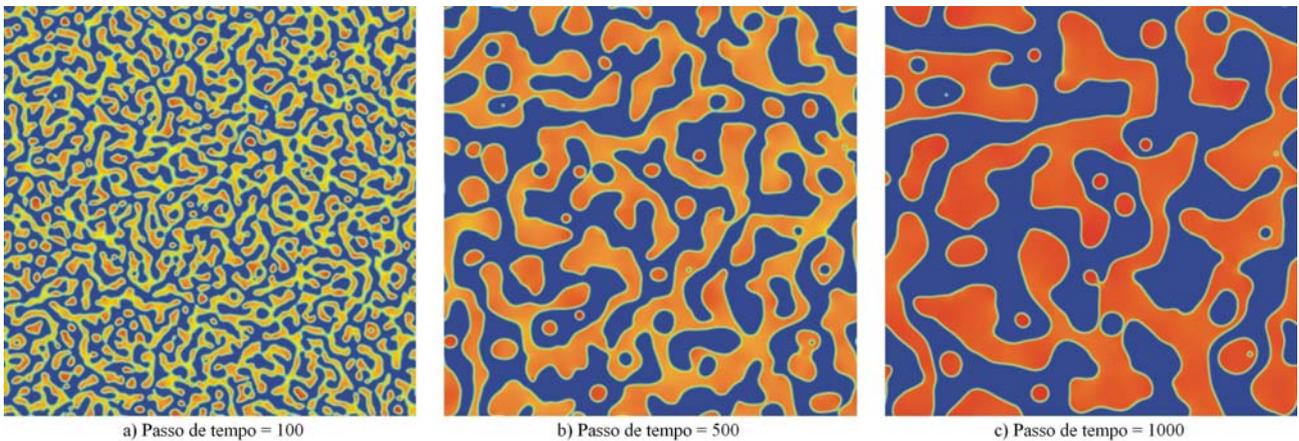


Figura 2: Imagens da simulação em diferentes passos de tempo, em uma rede com 512^2 sítio. O gradiente de cores no fluido vermelho representa as pequenas variações da densidade local.

Os recursos computacionais disponíveis limitaram as simulações à redes com 512^2 sítios. Foi observado que, em estágios avançados da simulação, quando o tamanho dos domínios se comparava ao tamanho da rede, ocorriam desvios significativos no expoente previsto.

A fim de julgar a influência dos parâmetros envolvidos, várias simulações foram realizadas. A Figura 3 mostra o resultado de várias simulações onde a viscosidade do fluido r é alterada, sendo que esta alteração não afeta significativamente o expoente encontrado. Os dados apresentados são referentes a valores de τ^r de $0,6$, $0,75$, $1,0$ e $5,0$, que correspondem a uma relação de viscosidades η^r / η^b entre os dois fluidos de $0,2$, $0,5$, $1,0$ e $9,0$.

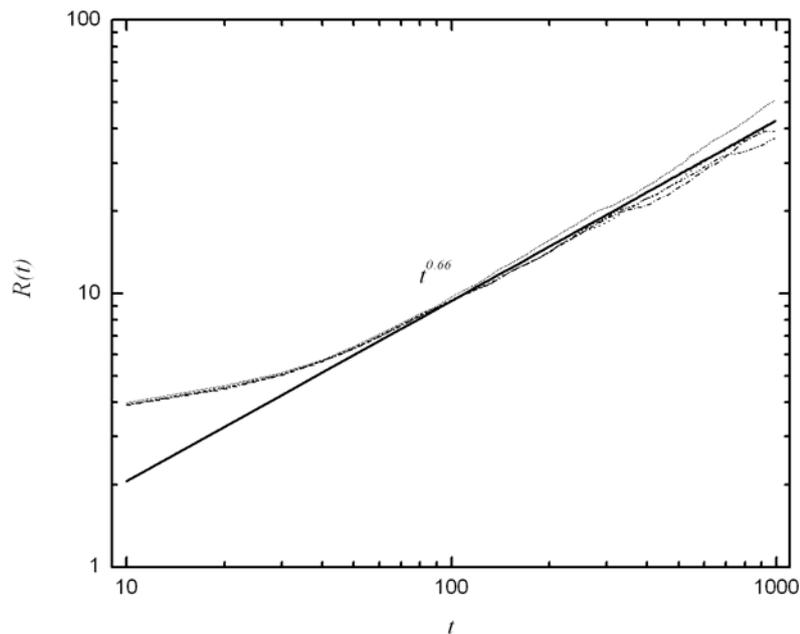


Figura 3: Influência da viscosidade do fluido r sobre $R(t)$.

3.2. Diminuição da área interfacial

É bastante simples de se perceber que, com crescimento dos domínios, a área interfacial diminuirá. Como os domínios crescem obedecendo uma lei potencial, é esperado que a área interfacial diminua também de acordo com uma lei de potência.

O escoamento de fluidos imiscíveis é classicamente tratado considerando-se que a camada de transição tem espessura nula e realizando-se um balanço de momento ao redor desta camada. Porém, a existência de uma camada de transição onde os dois fluidos coexistem é inerente aos métodos de Boltzmann para redes, então é necessário definir uma concentração crítica que defina os limites da interface. A concentração do fluido r é definido como $\rho^r/(\rho^r + \rho^b)$, então um sítio será considerado de interface se a sua concentração estiver entre valores críticos, por exemplo 0,1 e 0,9. O número total de sítios de interface representa a área interfacial, em unidades de rede.

A definição da interface não deve alterar de forma alguma o expoente encontrado para a lei de potência, pois, se isto ocorresse, seria necessário definir um tipo de definição de interface ideal e os resultados não seriam consistentes. Foram realizadas simulações com valores diferentes para a concentração crítica e não ocorreu nenhuma variação no expoente encontrado. A única alteração foi a mudança na fase inicial difusiva de decréscimo nulo, uma consequência esperada. Os resultados são mostrados na Figura 4.

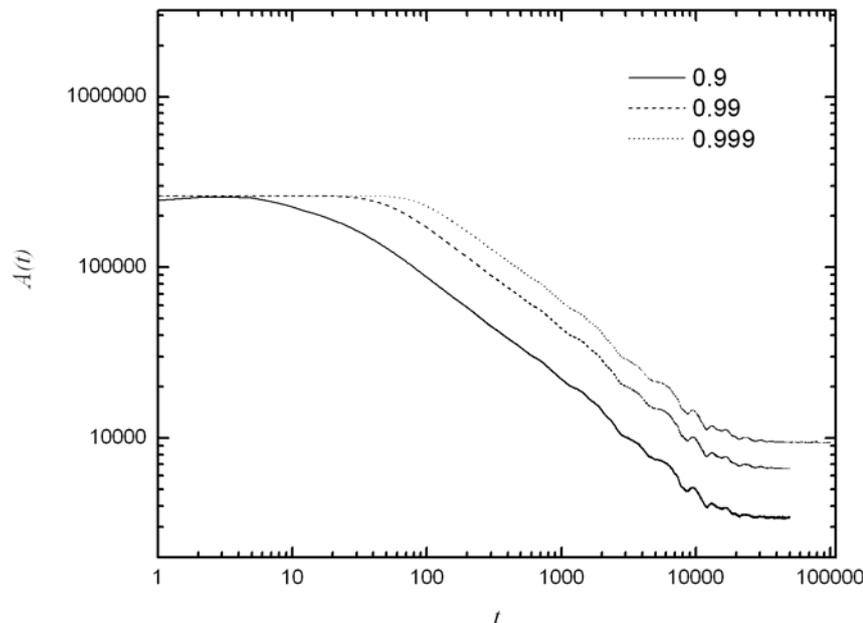


Figura 4: Comparação entre diferentes definições de interface. Nenhuma variação no expoente β foi observada.

Trabalhos relatando o decréscimo da área interfacial não são de conhecimento dos autores, portanto não pode-se comparar os resultados obtidos; o contrário ocorre com o crescimento dos domínios, área em que vários trabalhos foram publicados. Foi observado que o decréscimo da área interfacial é calculada com muito maior facilidade quando comparada com o crescimento dos domínios, exigindo esforço computacional muito menor. De fato, o crescimento dos domínios não pode ser simulado em redes com 1024^2 sítios devido ao enorme tempo envolvido nas simulações.

Os desvios do expoente que ocorrem na cauda da direita dos gráficos apresentados para decréscimo da área são uma consequência do tamanho da rede. A Figura 5 exibe um gráfico normalizado para redes de tamanho diferente. As simulações foram rodadas para redes de até 1024^2 sítios, mas redes desta magnitude acarretam em tempos de simulação muito grandes, por isso, a maioria das simulações foi feita em redes com 512^2 sítios.

A evolução de área interfacial $A(t)$ com o tempo é mostrada na Figura 6. Os valores críticos para a definição da interface são 0,001 e 0,999 e os parâmetros utilizados na simulação foram $\tau^{rr} = 1,0$, $\tau^{bb} = 1,0$, $\tau^{rb} = 1,0$, $A = 0,4$, em uma rede de 512^2 sítios, com distribuição inicial aleatória de ρ^r e ρ^b . A fase inicial, onde a área interfacial não decai representa o período de formação da interface através de difusão.

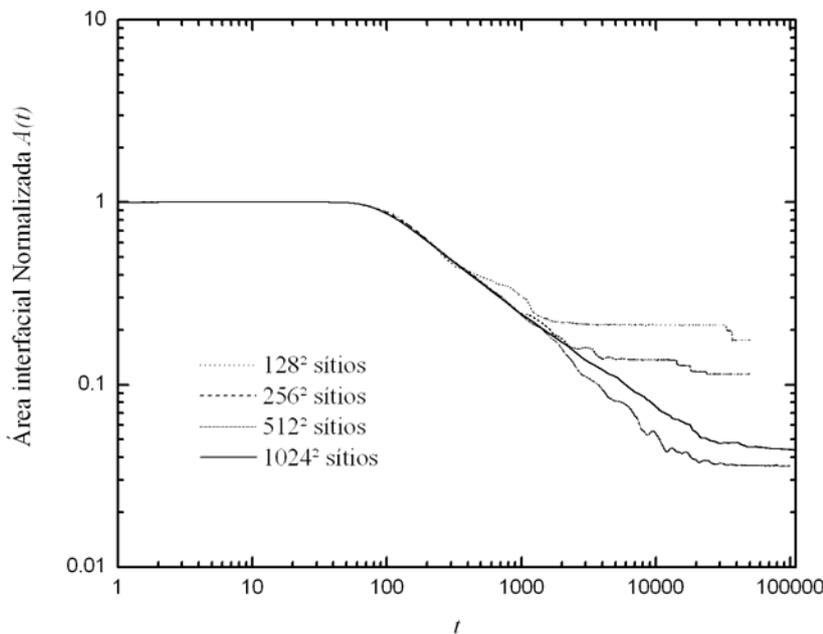


Figura 5: Efeitos do tamanho de rede sobre a precisão dos dados.

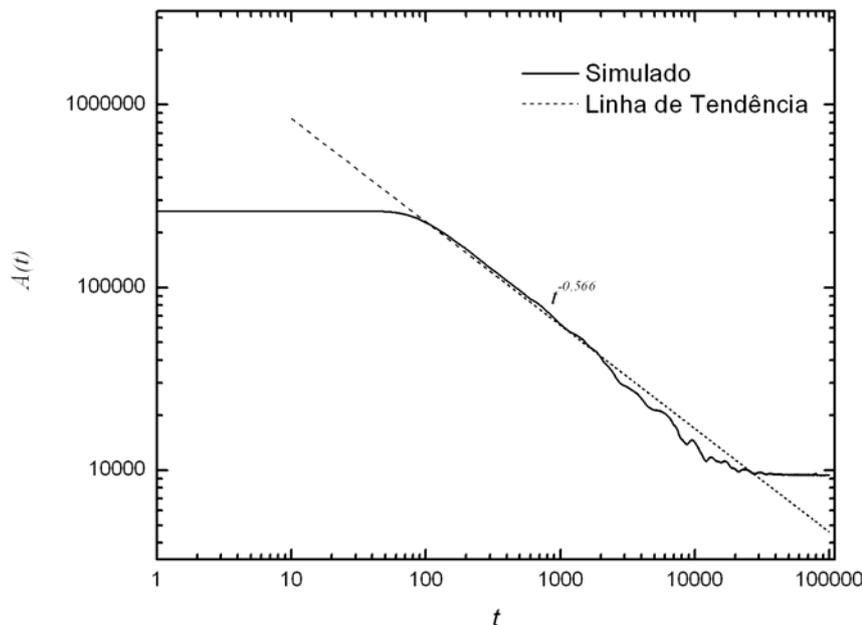


Figura 6: Decréscimo da área interfacial com o tempo, para uma rede de 512^2 sítios.

Existe, nos dois gráficos apresentados para o decremento da área interfacial, uma cauda na extrema direita que não obedece à lei de potência. Isto indica o fim da separação de fases, que ocorre quando os domínios atingem o seu tamanho máximo, parando de crescer e, portanto, a área interfacial não decai além disto.

A variação da viscosidade do fluido r não causou mudanças consideráveis no expoente referente ao crescimento dos domínios, portanto é esperado que também não influencie o decremento da área de interface. Foram feitas simulações utilizando os seguintes valores de τ^{rr} : $0,6$, $0,75$, $1,0$ e $5,0$, ou seja, os mesmo utilizados na simulação do crescimento dos domínios. Os resultados são apresentados na Figura 7. Pode-se notar que as divergências ocorrem apenas próximo ao final da simulação, quando os efeitos de rede diminuem a acurácia dos resultados.

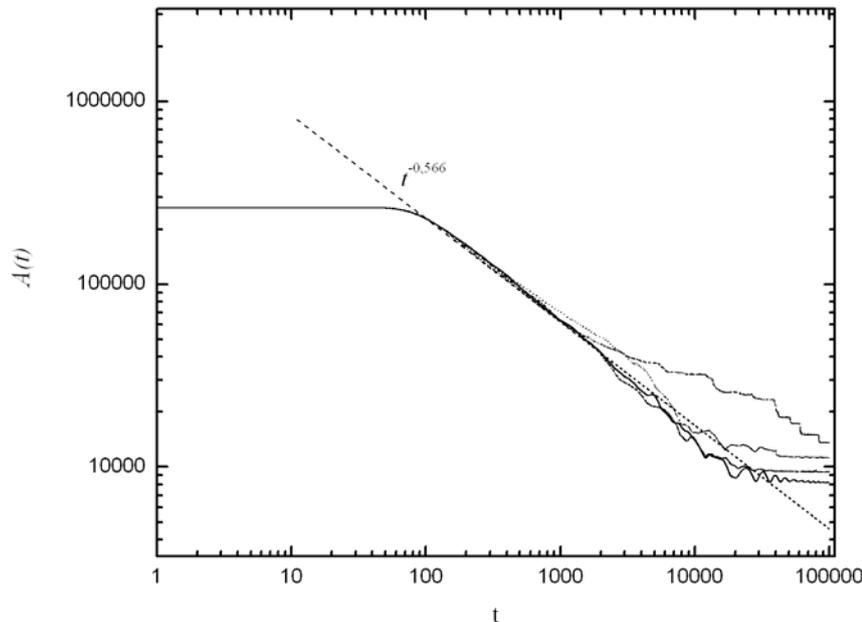


Figura 7: Efeito da viscosidade do fluido r na diminuição da área interfacial. No lado direito, de baixo para cima, os valores de τ'' são $0,6$, $1,0$, $0,75$ e $5,0$, respectivamente, portanto, o desvio que ocorre não depende da viscosidade, sendo apenas o erro devido ao tamanho da rede.

4. CONCLUSÕES

Um modelo de Boltzmann para redes foi proposto para simular escoamento de fluidos imiscíveis, em um processo de decomposição espinodal. Foi estudado tanto o crescimento dos domínios como a diminuição da área interfacial. Os resultados para o crescimento dos domínios concordaram plenamente com outros trabalhos e com previsões teóricas. Não existem, a conhecimento dos autores, outros trabalhos que relatem decomposição espinodal focalizando a discussão no decréscimo da área interfacial.

Efeitos numéricos, como o tamanho da rede e definição da interface foram discutidos. A viscosidade dos fluidos não mostrou influencia sobre os expoentes encontrados. Trabalhos futuros são necessários para que se possa apreciar a influência da tensão interfacial neste processo.

5. AGRADECIMENTOS

Agradecemos o CNPq, Finep e ANP pela oportunidade de participar e colaborar no desenvolvimento deste projeto.

6. REFERÊNCIAS

- Alexander, F.J., Chen, S. and Grunau, D.W., 1993, "Hydrodynamic spinodal decomposition: Growth kinetic and scaling functions.", *Phys. Rev. B* **48**, 634.
- Bray, A.J., 1994, "Theory of phase-ordering kinetics", *Adv. Phys.* Vol **43**, No 3, p357-459.
- Chin, J. e Coveney, P. V., 2002, "Lattice Boltzmann study of spinodal decomposition in two dimensions." *Phys. Rev. E* **66**, 016303.
- Furukawa, H. 1985, "A dynamic scaling assumption for phase-separation", *Adv. Phys.* **34** 703.
- González-Segredo, N., Nevokee, M. and Coveney, P.V., 2003, "Three-dimensional lattice-Boltzmann simulations of critical spinodal decomposition in binary immiscible fluids", *Phys. Rev. E* **67**, 046304.
- Santos, L.O.E., Facin, P.C. and Philippi, P.C., 2003, "Lattice-Boltzmann model based on field mediators for immiscible fluids.", *Phys. Rev. E* **68**, 056302.

LATTICE BOLTZMANN SIMULATION OF HIDRODYNAMICAL SPINODAL DECOMPOSITION

Antonio Vinicius Gomes Teixeira (Times New Roman, negrito, tamanho 12)

LMPT, Departamento de Engenharia Mecânica, UFSC
Trindade, Florianópolis, Santa Catarina
CEP 88040-900, Caixa Postal 476
vinicius@lmpt.ufsc.br

Rodrigo Surmas

LMPT, Departamento de Engenharia Mecânica, UFSC
surmas@lmpt.ufsc.br

Paulo Cesar Philippi

LMPT, Departamento de Engenharia Mecânica, UFSC
philippi@lmpt.ufsc.br

***Abstract:** Binary mixtures separate into two immiscible fluids when quenched below a critical temperature. Once the process starts, the two domains grow and the interfacial area decreases as a power law with time. This process, known as spinodal decomposition, is important in the metallurgical, oil and food industries. In this work, a lattice Boltzmann model (LBM), based on a discretization of the continuous Boltzmann equation, is used to study the spinodal decomposition. Because of its mesoscopic character, the LBM is suitable for the macroscopic description of microscopic interactions, as interface dynamics and capillary phenomena. We investigate the effect of domain size, the viscosities of the fluids and the interfacial tension in two dimensional simulations. The results obtained show a very good agreement with experimental results and other works. The viability of using the present model to simulate two-phase two-component flow is evaluated.*

***Keywords:** lattice Boltzmann, spinodal decomposition, immiscible fluids.*