

Opbreekgedrag van druppels in rekstroming

Citation for published version (APA):

Harbrecht, D. J. (1992). *Opbreekgedrag van druppels in rekstroming*. (DCT rapporten; Vol. 1992.060). Technische Universiteit Eindhoven.

Document status and date:

Gepubliceerd: 01/01/1992

Document Version:

Uitgevers PDF, ook bekend als Version of Record

Please check the document version of this publication:

- A submitted manuscript is the version of the article upon submission and before peer-review. There can be important differences between the submitted version and the official published version of record. People interested in the research are advised to contact the author for the final version of the publication, or visit the DOI to the publisher's website.
- The final author version and the galley proof are versions of the publication after peer review.
- The final published version features the final layout of the paper including the volume, issue and page numbers.

[Link to publication](#)

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal.

If the publication is distributed under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license above, please follow below link for the End User Agreement:

www.tue.nl/taverne

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us at:

openaccess@tue.nl

providing details and we will investigate your claim.

opbreekgedrag van druppels
in rekstroming

Door: D.J. Harbrecht

Stage periode : dec. 1991 - maart 1992
Stage begeleider : ir. J. Janssen

W.F.W. rapport nr.: 92.060

Inhoud.

	blz.
- Samenvatting	1
- H1: Inleiding	2
- H2: Proefopstelling	4
- H3: Materiaalkarakterisering	7
- H4: Experimenten	12
- 4.1: Overzicht experimenten	12
- 4.2: Bepaling kritische capillair getal	12
- 4.3: "Affiene deformatie" proeven	14
- 4.4: Opbrekende draden	
- 4.4a: Opbrekende draad in rust	18
- 4.4b: Opbrekende draad in stroming	22
- 4.5: Druppel relaxatie	28
- H5: Conclusie	30
- Literatuur	32

Samenvatting

De praktijksituatie van het blenden van polymeren in een extruder is een zeer complex systeem (o.a. vanwege de viscoelasticiteit). Deze stage is een begin om te onderzoeken hoe een "viscoelastische" druppel zich gedraagt in een stromingsveld van een met de druppel niet mengbare matrix vloeistof.

De experimenten zijn uitgevoerd in het zogenaamde "opposed jets"-apparaat. Dit apparaat gaat uit van een hyperbolische rekstroming die, m.b.v. een regeling om de druppel in het stagnatiepunt te houden, zorgt voor de deformatie van de druppel .

De proeven hebben zich met de volgende zaken beziggehouden. Het bepalen van de oppervlaktespanning σ , de bepaling van het kritische capillair getal (de grootst mogelijke reksnelheid van de matrix-vloeistof, waarbij de druppel nog net een stabiele vorm behoudt). "Affiene deformatie" proeven, kijken naar het gedrag van een druppel bij overschrijdingen van het kritische capillair getal. Hieruit blijkt dat de viscoelastische vloeistof langzamer deformeert dan de visceuze partner. Verder is er gekeken naar veruitgerekte druppels die als draad opbreken in de stroming. De resultaten van visceuze draden kwamen redelijk overeen met de theorie, zoals die beschreven is door Ottino J.M. en Tjahjadi M., maar de viscoelastische draden weken sterk af van de theorie. Als laatste is gekeken naar de relaxatie van druppels, door ze eerst met een bepaalde snelheid tot een bepaalde vorm te deformeren en ze dan in een veld zonder stroming terug te laten keren in de oorspronkelijke bolvorm. Doordat de vervormingen hier te gering waren, is er geen verschil tussen visceus en visco-elastisch waargenomen.

H1: Inleiding

Deze stage is bedoeld als experimenteel onderzoek naar het dispergeren van niet-mengbare vloeistoffen. Het onderzoek is nodig, omdat de meeste combinaties van polymeren om thermodynamische redenen onmengbaar zijn op moleculair nivo. Omdat de morfologie van grote invloed is op de uiteindelijke materiaaleigenschappen, is het van belang te weten hoe deze tot stand komt in bijvoorbeeld een extruder. Dit (fundamenteel) onderzoek is gedaan aan een sterk vereenvoudigd systeem, omdat de praktijksituatie een complexe niet-isotherme, tijdsafhankelijke situatie is. De experimenten zijn in het zogenaamde "opposed jets"-apparaat (zie H2) uitgevoerd, met bekende vloeistoffen in een bekend stromingveld.

Het dispergeren van twee molueculair niet mengbare vloeistoffen (b.v. water en olie) wordt bepaald door twee processen, waarbij uitgegaan wordt van een disperse fase (die als druppels verdeeld is) in een continue fase. Enerzijds probeert de grensvlakspanning σ (of beter σ/R) het oppervlak minimaal te houden (dus de bolvorm te bewaren) en anderzijds wordt de druppel vervormd door de extern opgelegde spanning van het stromingsveld. De verhouding tussen deze twee concurrerende spanningen wordt gegeven door het capillair getal. Dit getal is als volgt gedefiniëerd:

$$Ca = \frac{\tau}{\sigma/R} = \frac{2G\eta_c R}{\sigma} \quad [-] \quad (1.1)$$

waarbij:

τ : de deformatiespanning [Pa.s]

G : snelheidsgradiënt [s^{-1}]

η_c : viscositeit continue fase [Pa.s]

σ : grensvlakspanning [Nm^{-1}]

R : straal onvervormde druppel [m]

Het capillairgetal kent een kritische waarde, waarbij de twee concurrerende spanningen elkaar nog net in evenwicht houden (dus het capillair getal bij de grootste uitwendige spanning, waarbij er nog net een stabiele vorm bestaat).

- $Ca < Ca_{crit}$ betekent dat er een stabiele vorm is (de grensvlakspanning overheerst).
- $Ca > Ca_{crit}$ betekent dat de vorm niet meer stabiel is (de extern opgelegde spanning overheerst). De druppel kan nu worden uitgerekt tot een draad. Bij een bepaalde draaddiameter gaat de σ/R factor weer overheersen en snoert de draad in. De draad breekt dan op in veel kleine bolletjes, waarna hetzelfde proces weer plaats kan vinden (echter, nu is R veel kleiner en zijn de ontstane druppeltjes veel starrer (σ/R veel groter)).

Het dispergeren van de twee vloeistoffen is dus in een paar deelgebieden op te splitsen:

- (a) Het deformeren van de druppel in het begin ($Ca > Ca_{crit}$?).
- (b) Het trekken van een draad ($Ca > Ca_{crit}$).
- (c) Het insnoeren van de draad en het opbreken tot een reeks kleine druppeltjes.

De in deze stage gedane experimenten zijn dan ook zo opgebouwd. Eerst is het kritische capillair getal bepaald voor de gebruikte vloeistof combinaties (a). Vervolgens is er gekeken hoe er draden worden getrokken bij overschrijding van Ca_{crit} (b). Hierbij is gekeken in hoeverre de draad dan het opgelegde stromingsveld volgt. Wanneer dit 100% is, spreken we van affiene deformatie. Daarna is gekeken naar het opbreken van draden (c). Dit is zowel gebeurt in stroming (te vergelijken met een draad die in de extruderschroef opbreekt) als in rust (als de draad net uit de extruderschroef komt valt het rekveld weg). Ook is gekeken naar relaxerende druppels (kijken hoe/of druppels weer naar de bolvorm gaan wanneer ze vervormd zijn) en met name naar de invloed van viscoelasticiteit van de druppelfase hierop.

H2: Proefopstelling

Alle experimenten zijn gedaan in het zogenaamde "opposed jets" apparaat (zie fig.1 en fig.2). Het apparaat bestaat uit vier vaste blokken tussen twee parallelle wanden (de afmetingen zijn typisch enkele centimeters). Vanuit twee tegenovergestelde zijden wordt de continue fase naar binnen gepompt, alwaar de vloeistof stromen met elkaar in botsing worden gebracht, zodat er in het stagnatiepunt een 2-D hyperbolische rekstroming optreedt. Het snelheidsveld vlak bij het centrum wordt gegeven door: $u = Gx$, $v = -Gy$, $w=0$, waarin $G [s^{-1}]$ de (scalaire) snelheidsgradient is. Het voordeel van (rotatievrije, $\Omega=0$) rekstroming is, dat ze efficiënter is dan afschuifstroming. Dit uit zich bijvoorbeeld in het feit dat bij viscositeitsverhouding $\eta_d/\eta_c > 4$ een druppel wel te breken is in rotatievrije rekstroming, maar niet in afschuifstroming.

De continue fase wordt door een pomp in het apparaat gestuurd. De snelheidsgradiënt blijkt evenredig te zijn met het debiet en dus met de ingestelde pompstand PS [-]:

$$G[s^{-1}] = 0.0254[s^{-1}] * PS[-] \quad (2.1)$$

M.b.v. een injectienaald kan een druppel van een disperse fase worden geïnjecteerd in het middenvlak, tussen de parallelle voor- en achterwand. Daarna wordt de naald teruggetrokken om het stromingsveld niet te verstoren.

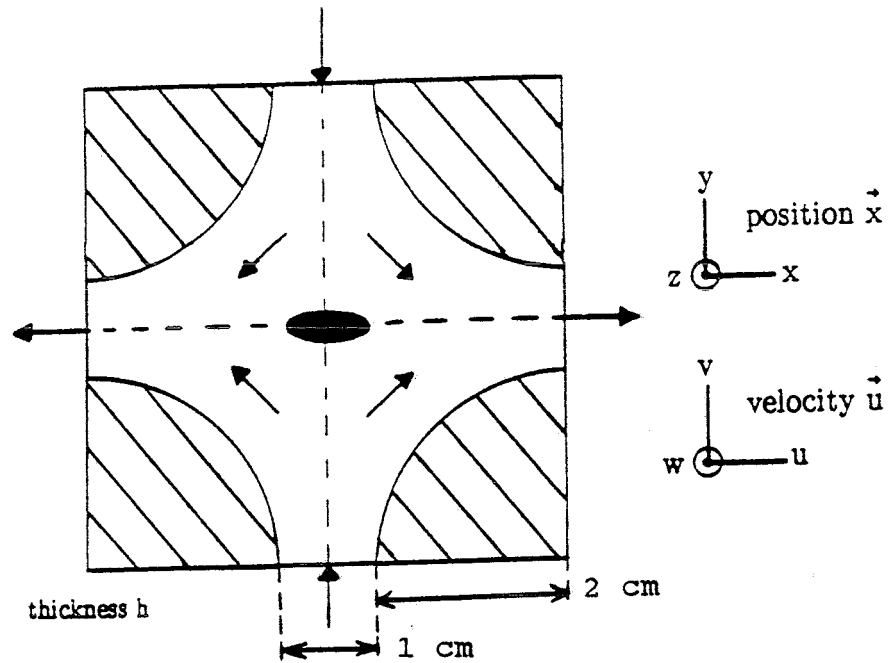
Om de druppel in het stagnatiepunt van de vloeistofstroom te houden is er een terugkoppeling aangebracht. Vanuit de op het apparaat gerichte videocamera wordt het beeld verstuurd naar een beeld-bewerker die met een frequentie van 25 [Hz] het middelpunt van de druppel berekent. Dit gegeven wordt dan naar de computer gestuurd, die op zijn beurt de gewenste regelactie berekend. De regeling geschiedt middels het aanbrengen van een debietverschil tussen de uitgangen van het systeem, terwijl het totale debiet gelijk blijft (het actuele stagnatiepunt wordt dan over de x-as verschoven, terwijl G constant blijft). De werking is op één beeldpixel nauwkeurig en vindt plaats

langs de x-as, die in de opstelling verticaal geplaatst is, zodat de druppel niet door zwaartekracht (geringe dichtheidsverschillen $\rho_d - \rho_c$) effecten kan ontsnappen.

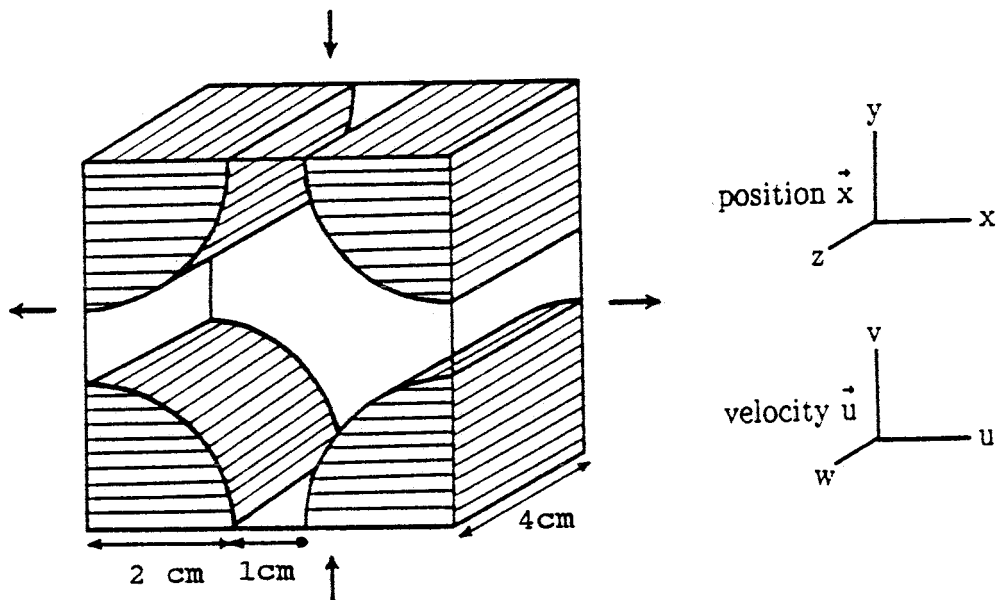
Aan de videocamera zit verder een videorecorder gekoppeld, waardoor de proeven op een later tijdstip kunnen worden opgemeten (met een maximale nauwkeurigheid van de pixelgrootte van het beeldscherm en tijdstappen van 50^{-1} [s]). De vergroting naar de monitor kan worden ingesteld tussen de 17- en 100 maal, zodat details tot ca. 10 [μm] zichtbaar zijn.

Voor het maximaal op te leggen rekveld zit de beperking niet in het pompvermogen, maar in het systeem zelf. Bij hoge pompsnelheden (afhankelijk van de viscositeit) kan een ontoelaatbaar hoge druk worden opgebouwd.

Bij proeven, waar instantaan het stromingsveld aan of uitgezet wordt, kan er tijdelijk een kraan in het systeem worden gezet. Deze kraan heeft een rondpomstand en een doorgaande stand, zodat de inschakel-traagheid van de pomp omzeild kan worden door de kraan bij lopende pomp plotseling in de doorgaande stand te draaien.



figuur 1, principe van het "opposed jets"-apparaat.



figuur 2, 3-D-cel van het "opposed jets"-apparaat voor hyperbolische stroming.

H3: Materiaalkarakterisering.

Voor een fundamenteel onderzoek is het nodig dat de vloeistoffen goed gekarakteriseerd zijn en het stromingsveld bekend is.

Overzicht van de gebruikte vloeistoffen, met σ_1 de grensvlakspanning t.o.v. silicone olie met $\eta_c=2.8$ [Pa.s] en σ_2 de grensvlakspanning t.o.v. silicone olie met $\eta_c=0.94$ [Pa.s]:

vloeistof	η_d [Pa.s]	σ_1 [N/m]	σ_2 [N/m]	ρ [kg/m ³]
castor olie	0.74	$4.6 \cdot 10^{-3}$	$4.1 \cdot 10^{-3}$	958.5
Cs 70/30	0.073	$26.4 \cdot 10^{-3}$	$21 \cdot 10^{-3}$	1272.8
Cs 80/20	0.35	$28.0 \cdot 10^{-3}$	$18 \cdot 10^{-3}$	1322.4
Cs 90/10	3.4	$29.5 \cdot 10^{-3}$	$18 \cdot 10^{-3}$	1372.9
Cs 70/30/.1s	0.87	$26.4 \cdot 10^{-3}$	-	1272.8
Cs 80/20/.01s	4.0	$28.0 \cdot 10^{-3}$	-	1322.4
Cs 90/10/.01s	6.5	$29.5 \cdot 10^{-3}$	-	1372.9

(tabel 1)

De viscositeiten van zowel de matrixvloeistof als de druppelvloeistof zijn gemeten in een plaatkegel rheometer. Met deze rheometer zijn dynamische proeven uitgevoerd. De viscoelasticiteit wordt dan gekarakteriseerd door de zgn.:

- opslagmodulus G' (elastische deel)
- verliesmodulus G'' (visceuse deel)

De verhouding tussen deze twee is gelijk aan de tangens van de fasehoek δ . Bij een visceuse (vloeistof) is δ 90° en bij een elastische (vaste stof) is δ 0° . Om een vergelijking te krijgen is voor de dynamische viscositeit gekozen voor die waarde die bij $\omega = 1$ [rad/s] (zie fig.3), omdat in de gebruikte opstelling de snelheden ook van deze orde zijn. De zo verkregen gegevens zijn af te lezen in tabel 1.

De bepaling van de grensvlakspanning σ is gedaan in het opposed jets apparaat. Door de pomp nu langzaam te laten

$$\sigma = \frac{2G\eta_c R}{D} * \frac{(19p+16)}{(16p+16)} \quad (3.1)$$

waarin:

G = snelheidsgradiënt [s^{-1}]

η_c = viscositeit continue fase [Pa.s]

η_d = viscositeit disperse fase [Pa.s]

$p = \frac{\eta_d}{\eta_c}$ [-]

L = lengte vervormde druppel [m]

B = breedte vervormde druppel [m]

$D = \frac{(L-B)}{(L+B)}$ [-]

draaien, $Ca \ll Ca_{crit}$, en

de daarbij optredende

geringe vervorming D te

meten, terwijl de rek-

snelheid van de continue

fase en de viscosi-

teitsverhouding p bekend

zijn kan de

grensvlakspanning σ via

formule (3.1)¹ worden

berekend. Omdat deze

formule alleen maar opgaat voor kleine deformaties is als criterium gebruikt: $D < 0.15$.

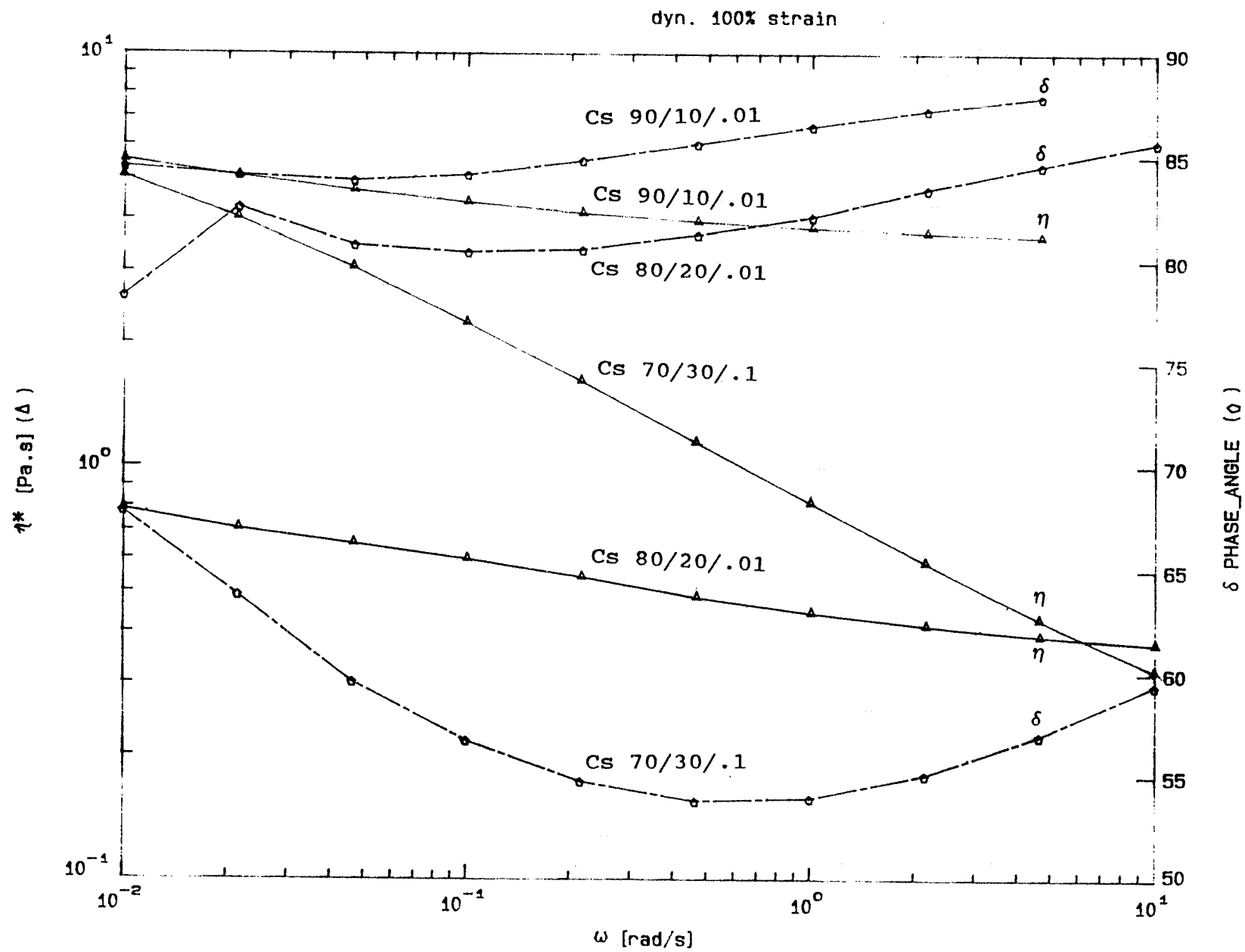
Voor de verschillende gebruikte vloeistoffen zijn de gegevens in figuur 4 weergegeven. De σ is ook met andere methoden gemeten. Een vergelijktabel wordt hieronder gegeven:

continue fase silicon. V2000 tegen:	σ_{small} def [N/m]	$\sigma_{sp.drop}$ [N/m]	$\sigma_{br.thre-}$ ad [N/m]	σ_{lit} [N/m]
castor olie	$4.2 \cdot 10^{-3}$	$4.1 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-3};$ $3.6 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-3}$ à $5 \cdot 10^{-3}$
Cs 70/30	$18 \cdot 10^{-3}$	$33 \cdot 10^{-3}$	$31 \cdot 10^{-3};$ $43 \cdot 10^{-3}$	$26 \cdot 10^{-3}$
Cs 80/20	$18 \cdot 10^{-3}$	$37 \cdot 10^{-3}$	$31 \cdot 10^{-3};$ $43 \cdot 10^{-3}$	$30 \cdot 10^{-3}$
Cs 90/10	$21 \cdot 10^{-3}$	$40 \cdot 10^{-3}$	$31 \cdot 10^{-3};$ $43 \cdot 10^{-3}$	$35 \cdot 10^{-3}$

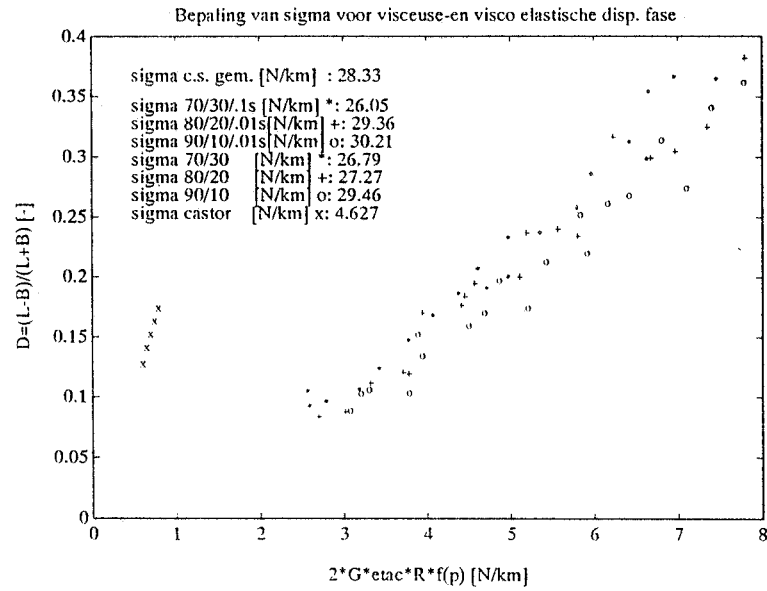
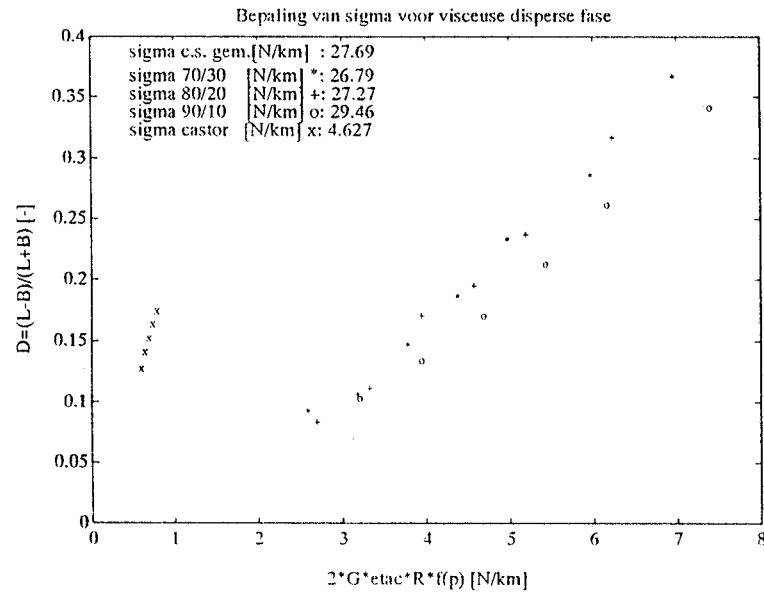
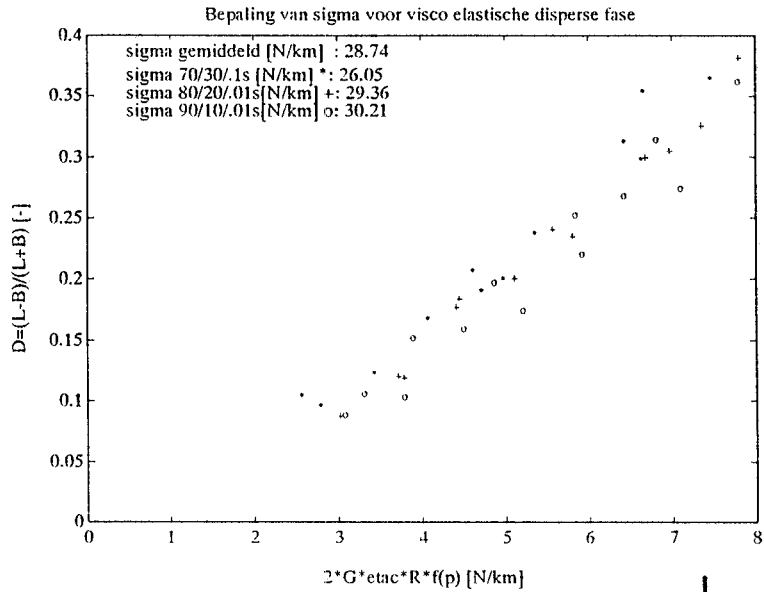
(tabel 2)

¹ theorie voor kleine deformaties; G.I. Taylor 1934

De grensvlakspanning tussen een vloeistof en siliconen olie is (theoretisch) onafhankelijk van de viscositeit van de siliconen olie. Hier zijn echter wel veranderingen opgetreden. Voor de waarden van de hierboven genoemde $\sigma_{\text{small def}}$ zoals die met het opposed jets apparaat zijn gemeten, is nieuwe (schone) siliconen olie gebruikt. Verschillen zoals die zijn gemeten (zie tab.1) met de verschillende soorten siliconen olie kunnen verklaard worden doordat er in deze (gebruikte) olie's vervuiling zit, die van invloed is op grensvlakspanning.



figuur 3, de viscositeitsmeting (dynamisch).
 gemeten: januari 1992
 plaatkegelrheometer, D = 50 [mm]



figuur 4, bepaling van grensvlakspanning σ

H4: Experimenten.

4.1: Overzicht van de experimenten.

- Bepaling van het kritische capillair getal (Ca_{crit}). Dit getal stelt de waarde voor, waarbij de druppel nog net een stabiele vorm behoud.
- "Affiene deformatie" proeven. Hierbij wordt gekeken of een druppel volledig meedearmeert met het opgelegde stromingsveld van de matrixvloeistof, bij een bepaalde overschrijding van Ca_{crit} . Dit zowel gedaan voor visceuse- als viscoelastische disperse fase.
- Het gedrag van opbrekende "draden". Om deze draden te vormen wordt een druppel in het apparaat tot een draad uitgerekt. In het grootste deel van het onderzoek is gekeken naar opbrekende draden in stroming en dit ook weer voor visceuze- en viscoelastische druppels. Dan is er ook nog een inleidende proef gedaan met een opbrekende viscoelastische draad in rust.
- Relaxerende druppels. Deze zijn vooraf gedeformeerd tot een bepaalde vorm (waarbij de voorgeschiedenis bekend is). Daarna wordt de pomp afgezet en gekeken hoe snel de druppel weer terug keert naar zijn oorspronkelijke bolvorm.

4.2: Bepaling van het kritische capillair getal (Ca_{crit})

Het kritische capillair getal is het getal, waarbij bij een opgelegd uitwendig stromingsveld de druppelvorm nog net stabiel blijft. Dit wordt bepaald door een druppel te belasten met een zeker stationair stromingsveld en te kijken of hij stabiel blijft (ook na lange tijd). Is dit het geval en is het het maximale stromingsveld waarbij de druppel stabiel blijft, dan kan uit

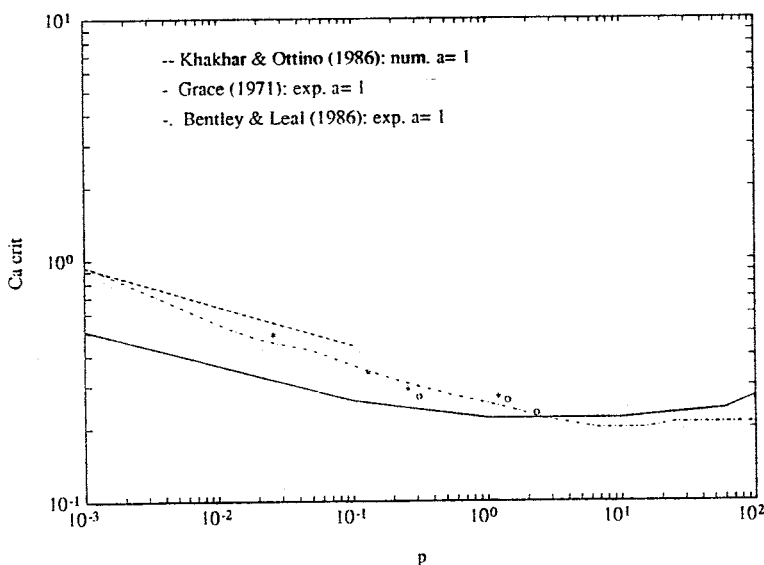
$$Ca = \frac{2G\eta_c R}{\sigma} [-] \quad (4.1)$$

de pompstand G worden bepaald.

R is de straal van de onvervormde druppel en σ en η_c zijn al eerder bepaald (zie tab.1). Dan kan met (4.1) het Ca_{crit} getal worden bepaald. Deze kritische capillair getallen zijn tegen de viscositeitsverhouding uitgezet in figuur 5. In deze plots zijn ook de lijnen gezet van Grace en van Bentley & Leal, die al eerder soortgelijke experimenten hebben gedaan. De hier gevonden punten komen redelijk met de lijnen overeen. Het "opposed jets"-apparaat lijkt dus een goede reproduceerbaarheid te hebben. Opvallend is dat de viscoelastische druppels nagenoeg dezelfde Ca_{crit} hebben als de visceuze. Blijkbaar komt de elastische component niet tot uiting bij deze relatief kleine deformaties(nelheden).

vloeistof disperse fase	Ca_{crit} bij si- liconen olie $\eta_d = 2.8$ [Pa.s]	Ca_{crit} bij si- liconen olie $\eta_d = 0.94$ [Pa.s]
castor olie	0.29	0.43
Cs 70/30	0.49	0.36
Cs 80/20	0.34	
Cs 90/10	0.27	0.26
Cs 70/30/.1	0.27	
Cs 80/20/.01	0.26	
Cs 90/10/.01	0.23	

(tabel 3)



figuur 5, experimentele waarden Ca_{crit} tegen p uitgezet tegen waarden uit de literatuur.

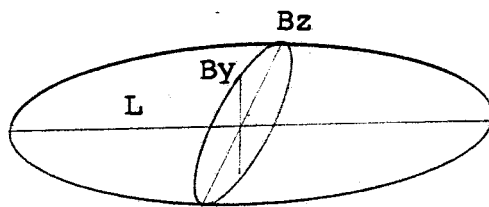
* visceuze disperse fase tegen siliconenolie matrix.
o viscoelastische disperse fase tegen siliconenolie matrix.

4.3: "Affiene deformatie" proeven

Affiene deformatie is het proces, bij mengen, waarbij de grensvlakspanning σ (of beter σ/R) geen rol speelt ten opzichte van de afschuifspanning. Affien wil zeggen dat elk vloeistof elementje in de druppel precies stroomt en deformeert volgens het stromingsveld van de continue fase, zoals dat (in dit geval het "opposed jets"-apparaat) is opgelegd.

$$\tau \gg \sigma/R \text{ (ofwel: } Ca \gg Ca_{crit}\text{)}$$

In het begin van het mengproces, is de disperse fase nog aanwezig in de vorm van grote druppels (R groot). De component van de schuifspanning is dan veel groter dan die van de grensvlakspanning (σ/R). Daaruit volgt, dat de eerste deformatie van deze druppels een affien verloop heeft ($Ca \gg Ca_{crit}$). De deformatie van de druppel met begindiameter a is dan ook slechts een functie van de totale deformatie van het externe stromingsveld. Dit stromingsveld heeft in de verschillende richtingen een volgend verloop:



	L/a	By/a	D	Bz/a
2-D	e^{Gt}	e^{-Gt}	$\frac{\exp(2Gt) - 1}{\exp(2Gt) + 1}$	1
3-D	e^{-Gt}	$e^{-0.5Gt}$	$\frac{\exp(1.5Gt) - 1}{\exp(1.5Gt) + 1}$	$e^{-0.5Gt}$

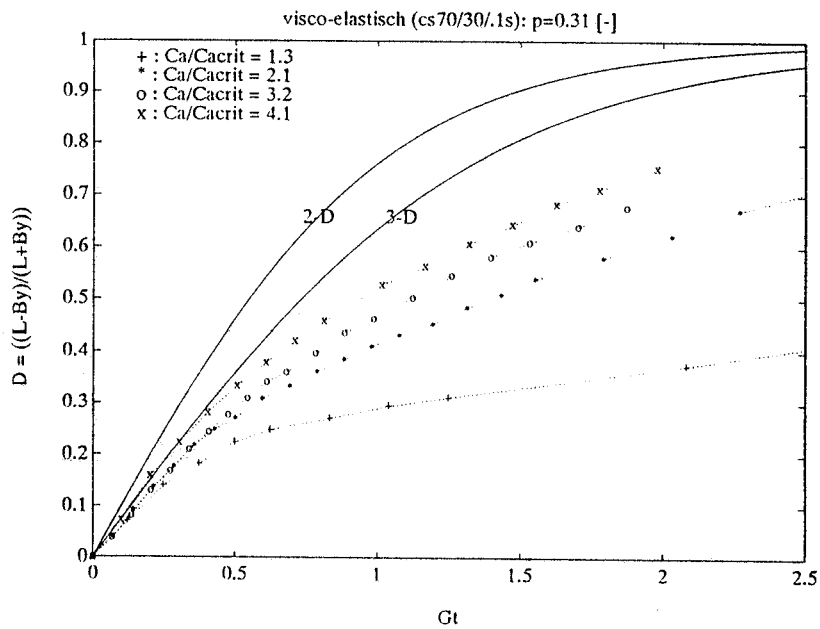
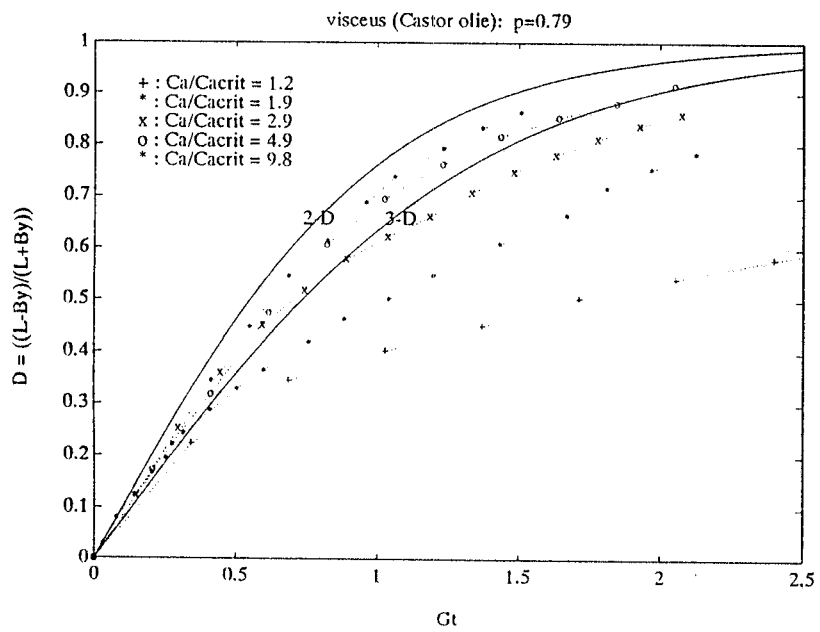
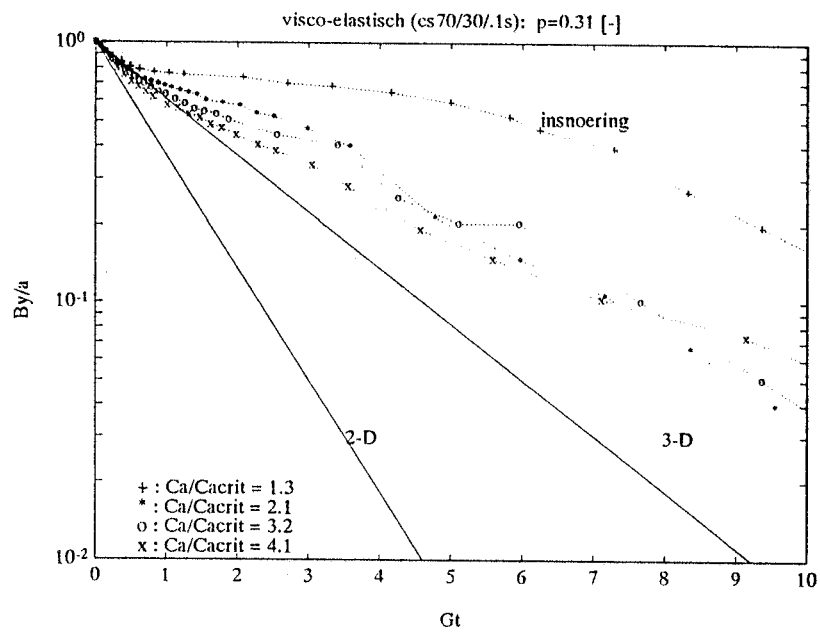
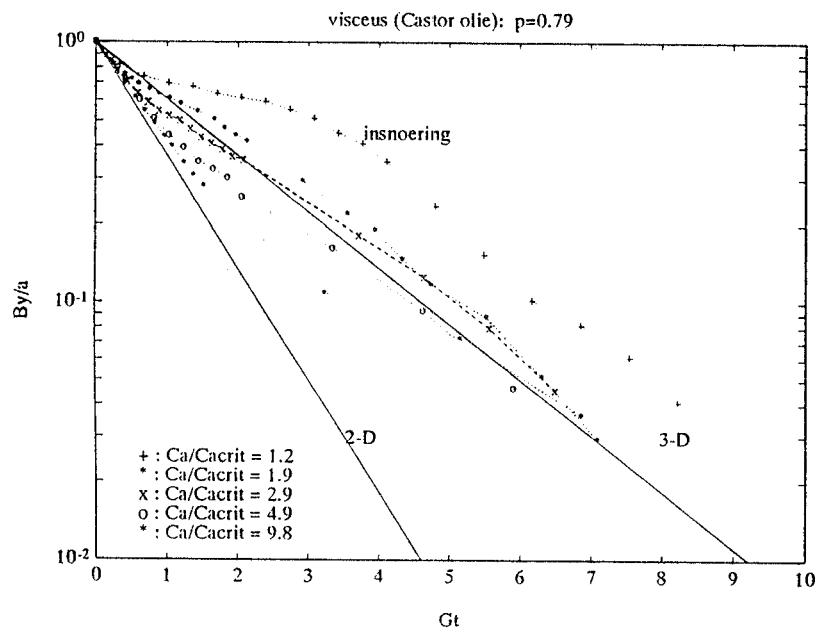
Het doel van deze proeven is: kijken bij welke overschrijding van het kritische capillairgetal (Ca_{crit}) de druppel affien meedeformeert met het stromingsveld van de matrixvloeistof.

In fig.6 en fig.7 zijn de verschillende deformatie maten uitgezet tegen de dimensieloze rek Gt [-].

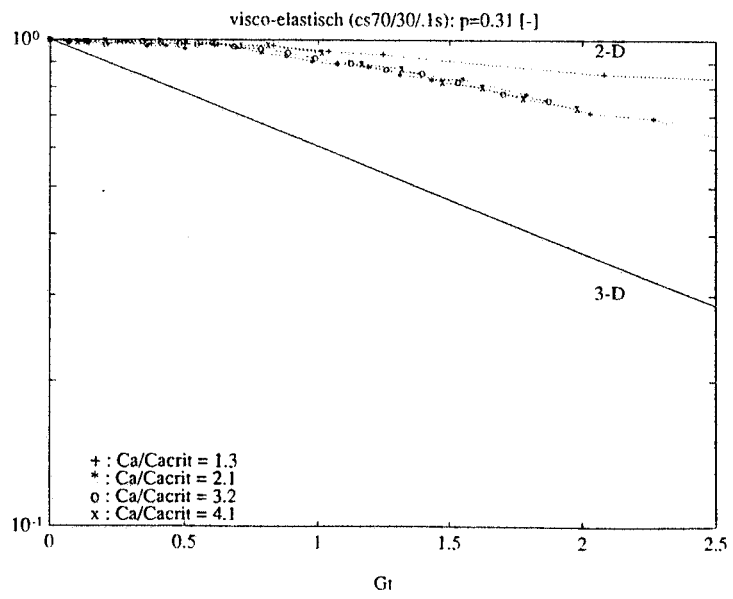
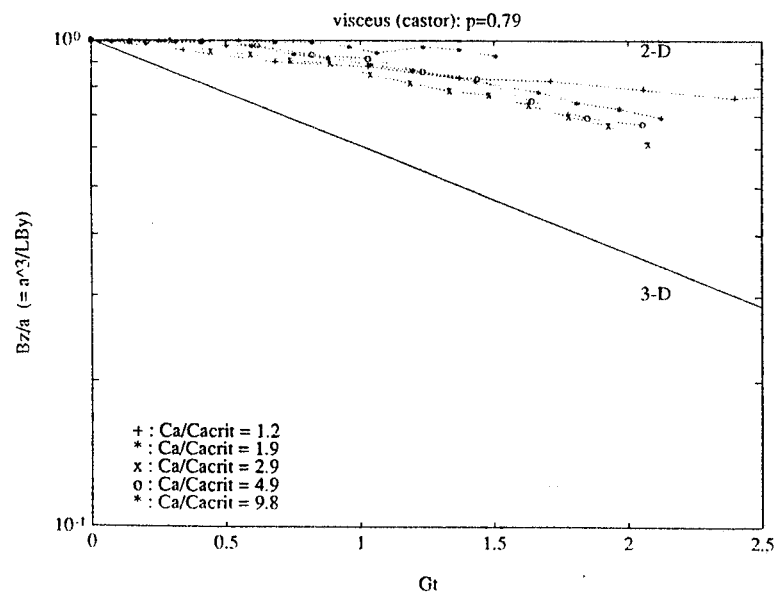
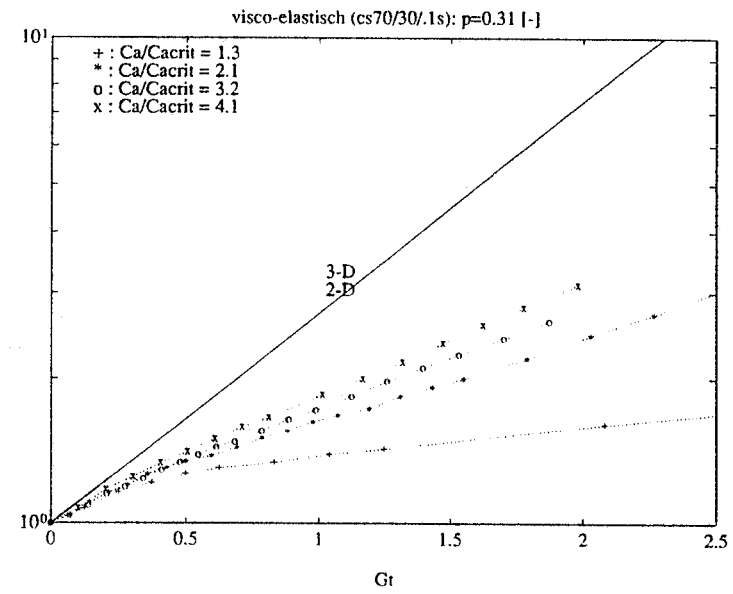
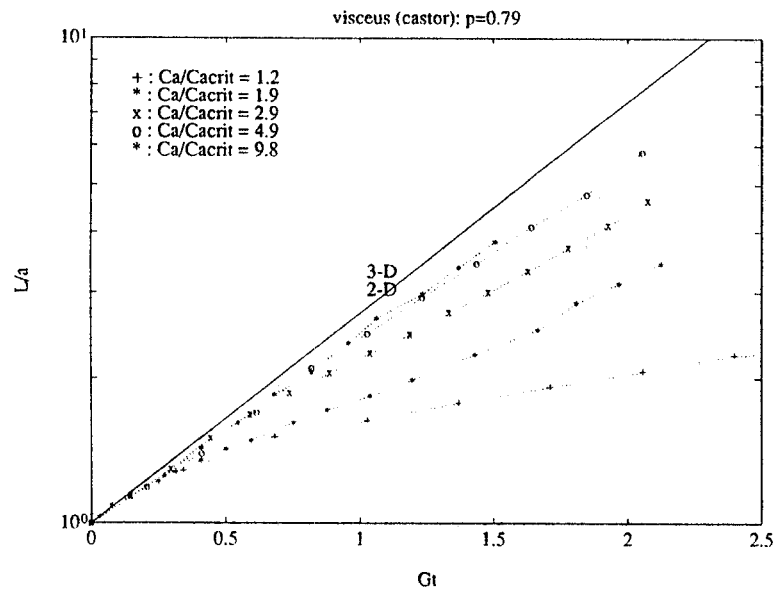
In de opstelling waaraan is gemeten, was het helaas niet mogelijk de lengte van de draad/druppel (L) lang te volgen, omdat de uiteinden buiten beeld verdwijnen. Daarom is de deformatie D , L/a en Bz/a ook niet over een groot gebied gemeten. Kijkende naar fig.6 valt bij vergelijk tussen de visceuse- en de viscoelastische vloeistoffen op, dat de visceuse sneller deformeert bij dezelfde overschrijding van Ca_{crit} .

Bij de By/a grafiek (zie fig.6), die over een veel langere tijdsspanne gemeten is dan de D -grafiek, lijkt het erop dat de druppel eerst 2-D wordt uitgerekt. Dit impliceert dus dat de druppel wordt plat gedrukt. Als dan verder wordt gekeken (hetgeen we met de D -plot niet konden) dan blijkt dat de draad zich o.i.v. de grensvlakspanning (locaal treed er aan de randen van het platte deel kleine R 's op) rond gaat trekken. Daarna volgt de draad de 3-D lijn, alsof hij van het begin af aan volgens de 3-D theorie is uitgerekt (dus ronde dwarsdoorsnede). Dit is ook al een beetje te zien in figuur 7, waar de lijn van $Ca/Ca_{crit}=9.8$ eerst de 2-D lijn volgt en daarna de lijn van $Ca/Ca_{crit}=1.2$ (deze wordt dus niet 2-D uitgerekt, maar veel langzamer dan affien) snijdt. Als de lijn langer gevolgd had kunnen worden, dan zou deze dus de 3-D lijn gaan volgen. De "affiene deformatie" treedt bij de visceuze vloeistof op bij een overschrijding van $Ca/Ca_{crit} \geq \pm 3$. Bij de viscoelastische vloeistof, waarbij tot een lagere overschrijding van Ca_{crit} is gemeten, lijkt het op het eerste gezicht op dat er een veel grotere weerstand tegen vervormen is. De lijnen van de gemeten vervorming, "weigeren" dan ook de helling van de 3-D-theorie aan te nemen.

De conclusie die we hier uit kunnen trekken is dat er bij viscoelastische vloeistoffen een veel grotere externe spanning moet worden aangelegd om tot affiene deformatie te komen dan bij visceuse vloeistoffen.



figuur 6, deformatie D en breedte rek By



figuur 7, deformatie L/a en Bz/a

4.4 Opbrekende draden

4.4a Opbrekende draad in rust

Voor het opbreken van draden in rust in een visceuze (Newtonse) vloeistof is er een theorie ontwikkeld². Hierbij zijn geen traagheidseffecten meegenomen. De verstoring amplitude α [m] (zie fig.8) groeit sinusvormig (zie ook fig.9) exponentieel in de tijd:

$$\alpha = \alpha_0 e^{qt} \quad (4.2)$$

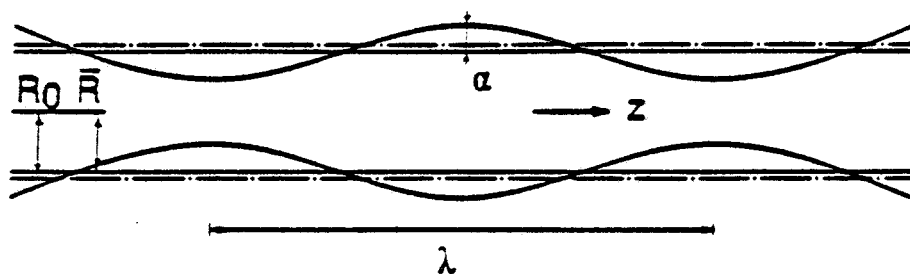
met groeisnelheid q [s^{-1}]:

$$q = \frac{\alpha \Omega(\lambda_m, p)}{2\eta_c R_0} \quad (4.3)$$

α_0 = oorspronkelijke verstoring amplitude [m]

R_0 = straal van de onverstoorte draad [m]

Ω is de dimensieloze groeisnelheid van de verstoring, een functie van p en van de golflengte λ^3 . Breuk treedt op, zodra de amplitude α gelijk is aan de gemiddelde straal \bar{R} van de draad.



figuur 8, sinusvormige Rayleigh verstoring op een vloeistofcylinder.

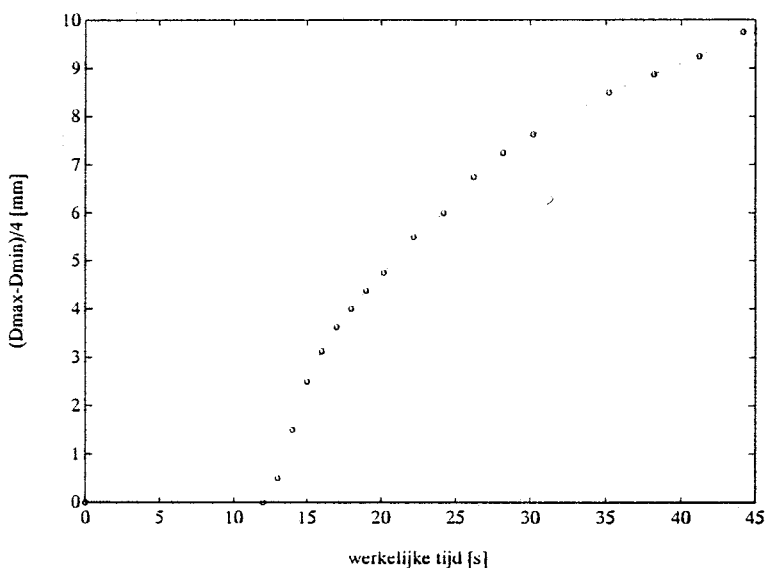
² Rayleigh 1879, Tomotika 1935

³ Tomotika 1935, Chappellear 1964

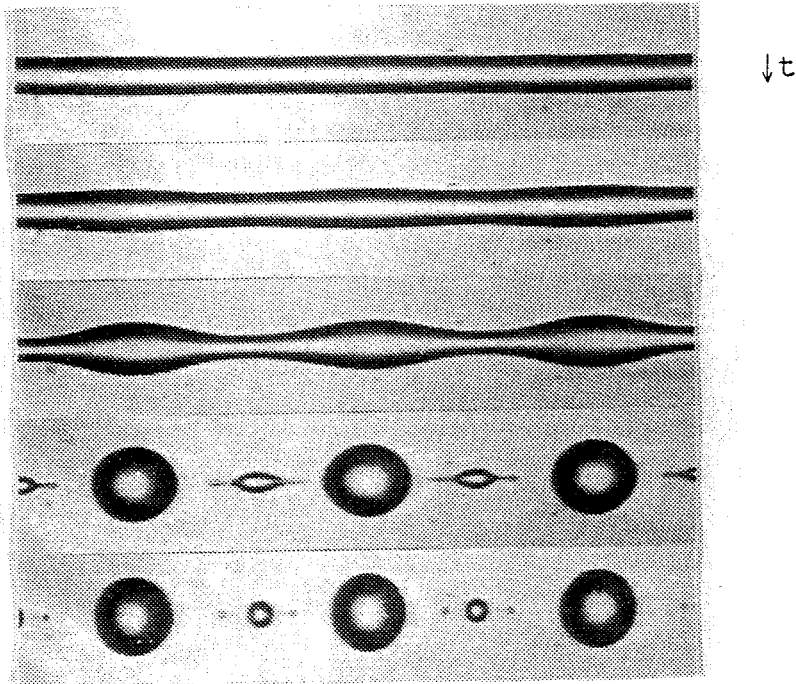
Bij experimenten met Newtonse vloeistoffen in het "oppo-
sed jets"-apparaat blijkt dat de theorie goed overeenkomt met
de werkelijkheid. In figuur 10 is te zien dat de draad via
mooie sinussen opbreekt. Omdat deze theorie alleen geldt onder
afwezigheid van een extern stromingsveld, zou de bruikbaarheid
in de praktijk kunnen liggen in het opbreken van draden in
zeer rustige zones.

Bij een viscoelastische draad is deze theorie niet meer
bruikbaar. Kijkende naar fig.11 valt meteen op dat er hier
niet meer van een zichtbare begingolflengte kan worden gespro-
ken. De benadering dat de insnoering door een sinus kan worden
beschreven gaat hier al helemaal niet op. De vorm heeft geen
sinus-vorm, maar meer weg van een haltervorm.

In figuur 9 is de amplitude van de verstoring uitgezet
tegen de tijd. De insnoering voldoet niet meer aan de theorie
van Rayleigh (de insnoering verloopt niet volgens een
e-macht). Vanaf een zekere insnoering is er in de filamenten
tussen de dikkere bollen blijkbaar zoveel oriëntatie aange-
bracht, dat het materiaal nauwelijks nog kan vloeien. De
insnoeringssnelheid stagneert hierdoor.

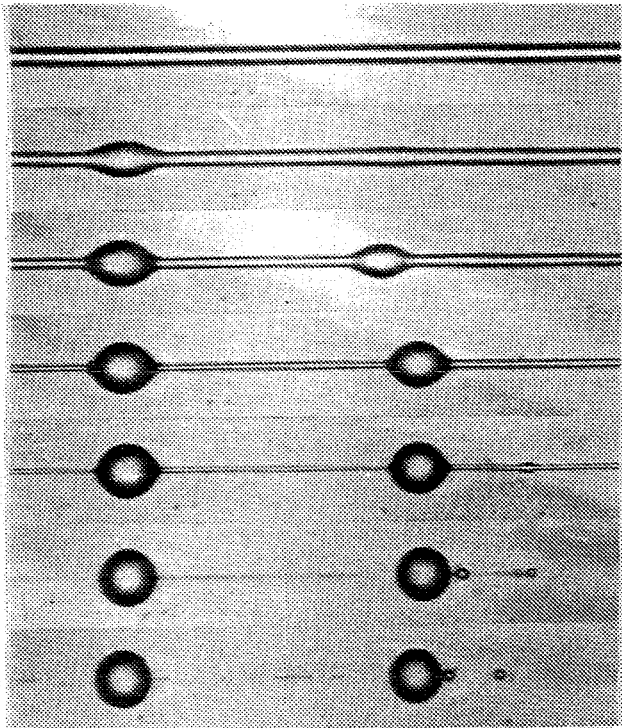


figuur 9, ampli-
tude van een vis-
coelastische
draad in rust.



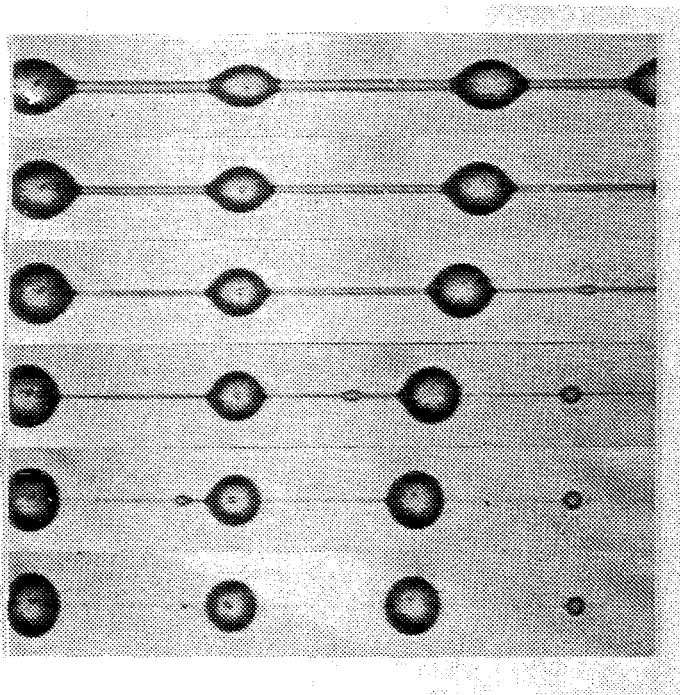
draad : castor olie ($\eta_d = 0.76$ [Pa.s], Newtons)
 matrix: siliconolie ($\eta_c = 0.94$ [Pa.s], Newtons)
 diameter = 0.35 [mm], $\sigma = 4.1$ [mN/m], tijdstap = 1 [s]

figuur 10, opbrekende visceuze draad in rust.



↓t

draad : corn sirup 80%,
 water 20%,
 PAA 0.01%
 (viscoelastisch).
 matrix: siliconenolie
 $\eta_c = 2$ [Pa.s]
 (Newtons).
 diameter = 0.07 [mm],
 $\sigma = 25$ [mN/m],
 tijdstap = 3 [s].



↓t

draad : corn sirup 80%,
 water 20%,
 PAA 0.01%
 (viscoelastisch).
 matrix: silicone olie,
 $\eta_c = 2$ [Pa.s]
 (Newtons).
 diameter = 0.13 [mm],
 $\sigma = 25$ [mN/m],
 tijdstap = 1 [s].

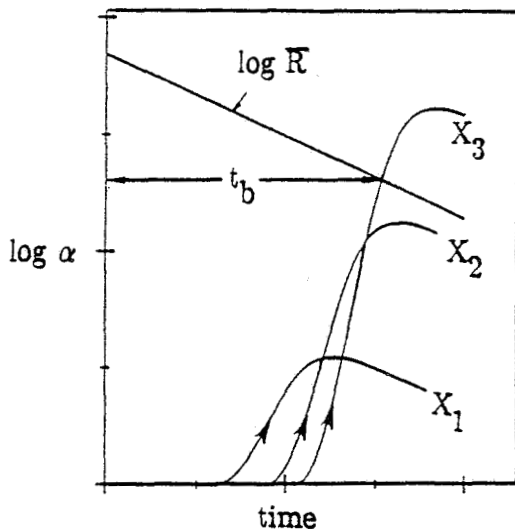
figuur 11, opbrekende viscoelastische draad in rust.

4.4b Opbrekende draad in stroming

In een extern stromingsveld breken draden aanzienlijk langzamer op dan in rust. Dit komt doordat de dominante golflengte van de opbrekende draad steeds wordt vergroot terwijl de radius continue afneemt. Hierdoor neemt het golfgetal van de dominante verstoring (op $t=0$ [s]):

$$X_m(0) = 2\pi R_0(0)/\lambda_m(0)$$

continue af in de tijd en de verstoring zal niet langer de snelst groeiende zijn, maar langzamer groeien of zelfs uitdoven. Daarna wordt een nieuwe verstoring dominant, met het golfgetal $X_m(t)$. Op deze wijze zullen er steeds nieuwe dominante golfgetallen komen, totdat er één doorgroeit tot een amplitude die gelijk is aan de gemiddelde straal van de draad (zie fig.12). Dit proces kan worden berekend voor een visceuze draad die met een uniforme reksnelheid wordt uitgerekt⁴.



figuur 12, verloop van de gemiddelde straal \bar{R} van een draad die met constante snelheid wordt uitgerekt en de amplitudes (α) van drie verstoringen met verschillende golf getallen.

De bekendste experimentele resultaten zijn van Grace (1971). Hij onderwierp ronde druppels instantaan aan een stationaire afschuifstroming. In zijn grafieken zette hij de opbrekttijd van een draad uit tegen de overschrijding Ca/Ca_{crit} , bij verschillende viscositeits verhoudingen p (zie fig.13a).

⁴Tomotika 1936, Mikami et al. 1975 en Ottino et al. 1991

De hier gemeten breuktijden, in rekstroming zijn volgens dezelfde methode uitgezet in fig.13b. De breuktijden in deze grafieken zijn als volgt dimensieloos gemaakt:

$$t_b^* = t_b \frac{\sigma}{\eta_c R_0} \quad \text{met } t_b: \text{ tijd tot breuk} \quad (4.4)$$

De manier waarop Grace de dimensieloze opbrekttijden tegen Ca/Ca_{crit} uitzet lijkt geen goede keuze. Om meer inzicht te verkrijgen wordt het proces van de opbrekende draad in stroming in drie deelgebieden opgesplitst gedacht:

I : De start van het proces, hierbij is het capillair getal van de druppel Ca_{drop} van belang. Uit de "affiene deformatie" proeven (§4.3) blijkt dat bij een overschrijding $Ca/Ca_{crit} < 3$ (voor visceuze vloeistoffen) er sprake is dat de druppel niet meteen affien deformeert, maar pas later de 3-D-rek helling volgt. Bij kleine overschrijdingen van Ca/Ca_{crit} heeft de druppel een bepaalde tijd nodig om instabiel te raken.

Deze start kan inzichtelijk worden gemaakt door naar het limietgeval te kijken: $Ca/Ca_{crit} \rightarrow 1$. Op $Ca/Ca_{crit} = 1$ behoudt de druppel juist zijn stabiele vorm en wordt de breuktijd dus oneindig. Bij kleine overschrijdingen van $Ca/Ca_{crit} = 1$ wordt de regeling wat instabiel als de druppel afwijkt van de ellipsoïde vorm. Dit heen en weer gaan (n.b. kleine uitwijkingen, afhankelijk van de grootte van de pompstand en de viscositeitsverhouding p) van de druppel veroorzaakt een soort "twijfelen".

Ingebied I is de karakteristieke tijd $t_\sigma = R_{drop}/\sigma$ relevant, overeenkomstig Grace (t^*).

II : In dit deel van de grafiek wordt de draad affien gedefor-
meerd. Bij $Ca/Ca_{crit} > 3$ (bij viskeuze vloeistoffen, voor
viscoelastische vloeistoffen ligt dit aanmerkelijk hoger)
blijkt dit vanaf de start meteen te gebeuren (zie fig.6).
Gebied I wordt dan overgeslagen. Als $Ca/Ca_{crit} < 3$ (viskeus)
dan blijkt de 3-D rek vanaf een $B_y/a < .5$ (zie fig.6)
plaats te vinden (dit punt is dus de overgang van gebied
I naar gebied II). In dit deel (gebied II) is als karak-
teristieke tijd $t_{flow} = 1/G$ van belang.

III: Het laatste deel, de insnoerende draad. De groeitijd van
de verstoring die breuk oplevert (zie fig.11) is nu van
belang. Daarmee is de Ca_{draad} van belang, dus de tijd
 $t_{\sigma} = \eta_c R_{draad} / \sigma$.

Om een betere beschrijving van de breuktijden (voor
viskeuze vloeistoffen) te krijgen, wordt er uitgegaan van de
affiene theorie (gebied I wordt overgeslagen). De gemiddelde
breukstraal R_b bij breuk moet nu voldoen aan de volgende
vergelijking, met t_b de tijd tot breuk⁵:

$$R_b = R_0 e^{-\frac{1}{2} G t_b} \quad (4.5)$$

$$\Rightarrow \log(R_b) = \log(R_0) - \frac{1}{2} G t_b \quad (4.6)$$

⁵Janssen J.M.H. en Elemans P.H.M.

Voor een opbrekende draad in stroming is als "best fit" uit een aantal computerberekeningen de volgende vergelijking gevonden⁶:

$$R_b = (66.0 \pm 6.6) 10^{-4} e_{\lambda}^{-0.89} p^{-0.44} \left(\frac{\sigma}{\eta_c G} \right)^X \quad (4.7)$$

voor 3-D rek: $e_{\lambda} = \sqrt{\frac{2}{3}}$, efficiencyparameter

Waarbij R_b [m] de breukdiameter is. Uit deze vergelijking volgt, uitgaande van steeds hetzelfde paar vloeistoffen en stromingstype (dus voor gegeven e_{λ} , p , σ , η_c):

$$R_b \propto G^{-X} \quad (4.8)$$

Waarbij $0.84 < X < 0.92$, afhankelijk van p (hier dus constant)

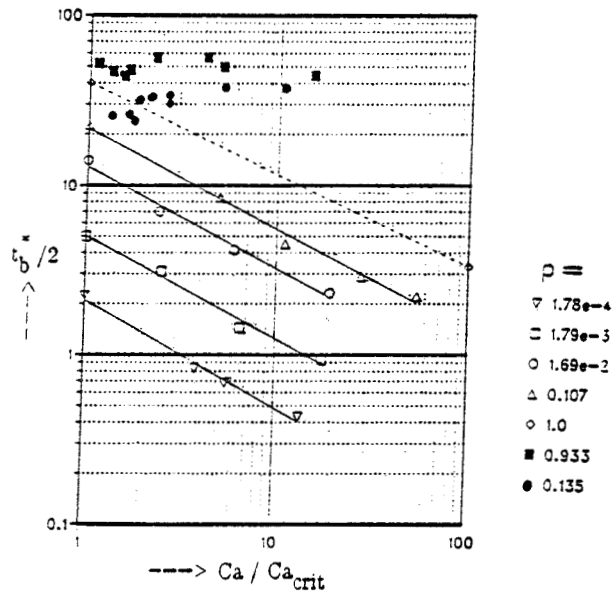
Dit resultaat kan nu worden ingevuld in (4.6), zodat de volgende vergelijking ontstaat (met veronderstellingen als in (4.8)):

$$2X \log G + 2 \log R_0 - G t_b = \text{constant} \quad (4.9)$$

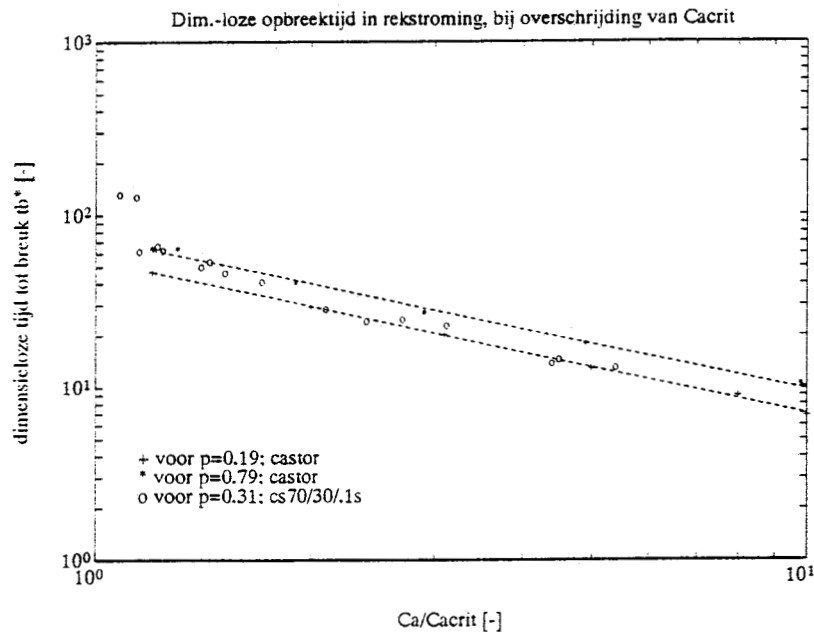
Voor visceuse druppels, doorgerekend met affiene deformatie ($t=0$ verplaatst om gebied I uit te schakelen), lijkt formule (4.7) te voldoen aan de waarden die met de experimenten bepaald zijn (zie fig.14).

De twee gevonden grafieken volgens Grace en de afleiding m.b.v. Ottino zijn uitgezet in fig.12a,b en fig.13. Uit beide grafieken blijkt, dat bij een kleine overschrijding van het kritische capillair getal de breuktijden sterk omhoog gaan. Dit komt dus omdat hier het gebied I niet verwaarloosd mag worden.

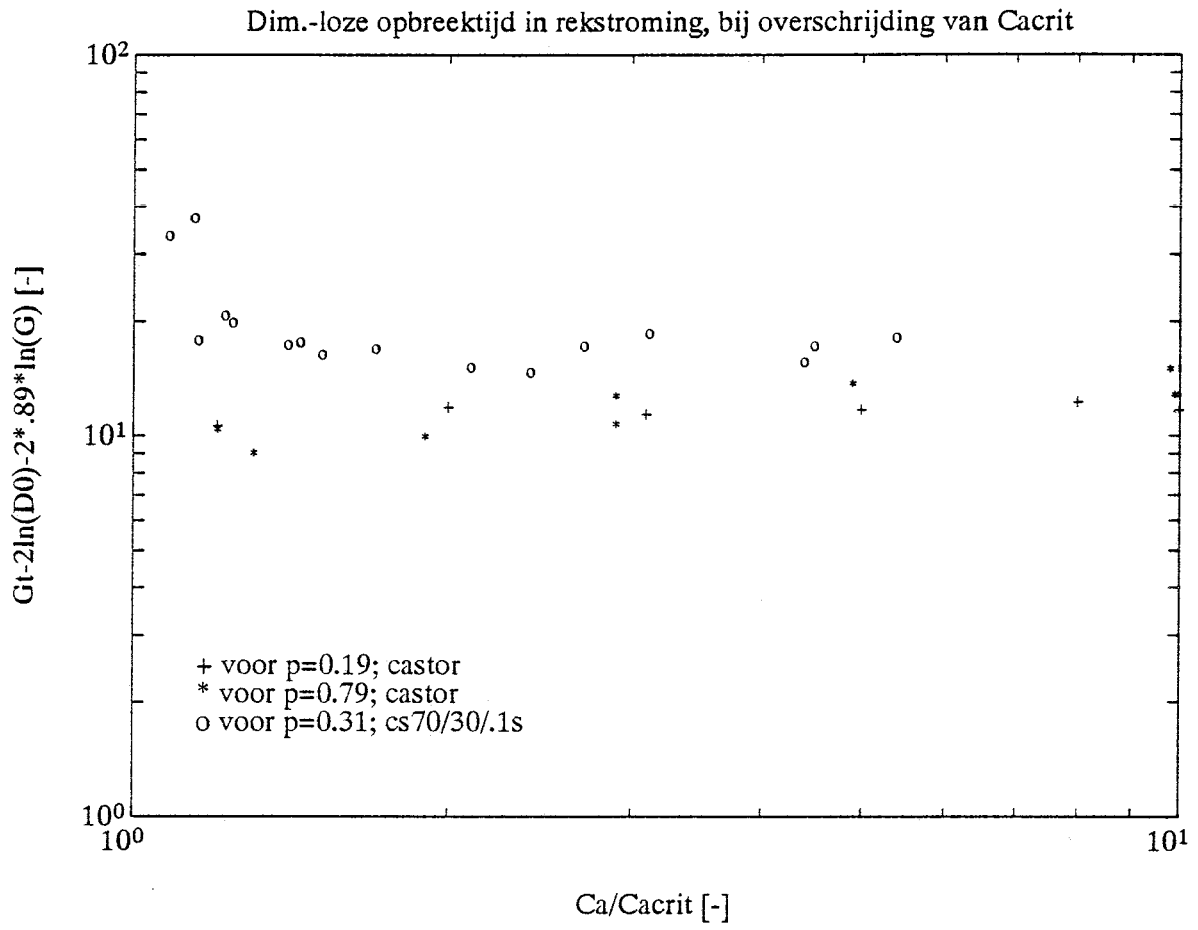
⁶M. Tjahjadi en J.M. Ottino



figuur 13a, breuktijden bij overschrijding van $Ca/Ca_{crit}=1$ in afschuifstroming; open symbolen Grace gesloten symbolen Elemans.



figuur 13b, breuktijden bij overschrijding van $Ca/Ca_{crit}=1$ in rekstroming.



figuur 14, breuktijden bij overschrijding van $Ca/Ca_{crit}=1$

4.5 Druppel relaxatie

De experimenten van de druppel relaxatie, het bekijken hoe snel vervormde druppels weer terug keren in hun oorspronkelijke toestand, zijn gedaan om te bekijken of de relaxatie afhankelijk is van de voorgeschiedenis. De hier verkregen resultaten zijn in figuur 15 uitgezet.

Uit deze grafiek blijkt dat de viscoelastisiteit van het corn-sirup-mengsel geen duidelijke verschillen vertoont met de visceuze (fig.15). Dat er geen verschil is gevonden tussen visceuse en viscoelastische vloeistoffen en de deformatie snelheid op het eerste gezicht geen invloed heeft, heeft te maken met de te geringe vervorming van de druppel, waardoor de moleculen die de viscoelastisiteit veroorzaken niet uitgerekt raken. Ook kunnen we dit uit fig.6 (B_y/a) opmaken. Bij geringe vervormingen wijkt de viscoelastische vloeistof maar weinig af van de visceuze tegenhanger.

Voor daadwerkelijke oriëntatie geldt de eis:

[voldoende deformatie] [snel genoeg]

$$\varepsilon = \dot{\varepsilon}t > 1 \quad \text{én} \quad \dot{\varepsilon}\vartheta > 1$$

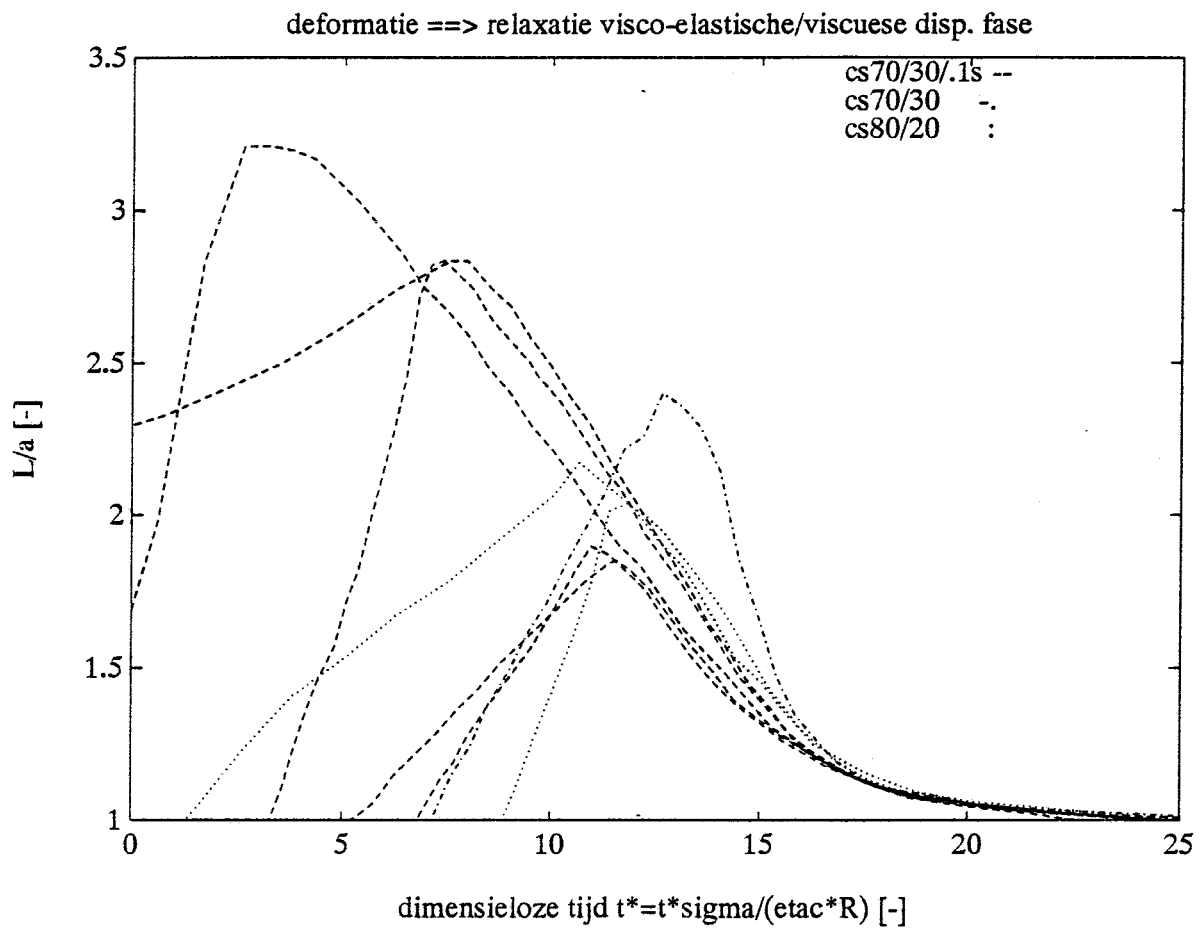
$\dot{\varepsilon}$ = deformatiesnelheid

t = deformatie tijd

ϑ = karakteristieke relaxatietijd van de "vloeistof"

D.w.z. de totale deformatie $\varepsilon(=\dot{\varepsilon}t)$ moet groot genoeg zijn en deze moet bovendien snel genoeg worden aangebracht, omdat de oriëntatie anders meteen al wegrelaxeert.

Bij opbrekende draden is waarschijnlijk wel aan deze eis voldaan; bij druppel relaxatie experimenten niet.



figuur 15, druppel relaxatie plot.

H5: Conclusie

De reproduceerbaarheid van het "opposed jets"-apparaat lijkt goed. Bij het bepalen van resultaten uit de literatuur in het kritische capillairgetal t.o.v. de viscositeitsverhouding p , blijkt dat deze goed overeen komen met de experimenten uitgevoerd door Bentley & Leal (1986). Viscoelastische druppels geven nauwelijks hogere waarden dan visceuze.

Bij de bepaling van de grensvlakspanning σ worden wel afwijkingen gevonden met de literatuur. Dit kan komen door verontreinigingen in de gebruikte vloeistoffen. Het is daarom aan te raden om bij experimenten met nieuwe vloeistoffen σ eerst te bepalen met behulp van de theorie voor kleine deformaties.

Affiene deformatie kan worden aangenomen bij visceuze vloeistoffen bij $Ca/Ca_{crit} > 3$. Bij viscoelastische vloeistoffen ligt dit getal aanmerkelijk hoger. Opvallend is dat de visceuze draden (zie fig.5, By/a) eerst de 2-D-lijn volgen en daarna de 3-D-lijn, alsof ze altijd al deze 3-D-lijn hebben gevolgd. Een verklaring is dat de draad door de 2-D deformatie plat is gedrukt en dan onder invloed van de grensvlakspanning σ/R (R aan de rand is heel klein geworden) rond wordt getrokken.

Het opbreken van draden in rust blijkt bij Newtonse vloeistoffen goed te voldoen aan de theorie. Bij viscoelastische vloeistoffen is de theorie niet meer van toepassing, dit komt onder andere doordat de draad niet meer volgens een sinus insnoert, maar via een soort haltervorm, waarschijnlijk als gevolg van moleculaire oriëntatie in de draad.

Bij opbrekende draden in stroming blijken de Grace-plots geen waarden tegen elkaar uit te zetten die in verband kan worden gebracht met de theorie. Een betere formule lijkt:

$$2X \log G + 2 \log R_0 - G t_b = \text{constant} \quad (4.9)$$

Dit geldt voor Newtonse vloeistoffen, maar voor viscoelastische vloeistoffen blijkt dat de opbrekttijd aanmerkelijk langer is. Dit komt ondermeer komen doordat de viscoelastische vloeistoffen veel meer moeite hebben om tot affiene deformatie over te gaan.

De invloed van de voorgeschiedenis op de relaxatie van viscoelastische druppels, kan op dit "opposed jets"-apparaat niet worden gemeten. Dit komt doordat de druppels maar tot een bepaalde deformatie bekeken kunnen worden en deze is te klein om verschillen aan het licht te brengen.

Literatuur

Bentley B.J.; Ph.D. Thesis, California Inst. of Technology, Pasadena California (1985).

Bruijn R.A. de; Ph.D. Thesis, TU Eindhoven (1989)

Elemans P.H.M.; Janssen J.M.H., Meijer H.E.H.; J. Rheol., Vol. 34 (8), p. 1311 (1990)

Grace H.P.; Eng. Found. Res. Conference Mixing, 3rd Andover, N.H. (1971), republished in Chem. Eng. Commun., Vol.14, p.225 (1982).

Janssen J.M.H.; AIO-2 Report, TU Eindhoven, WFW 91.8, (1991); also: The Preparation of dispersions, Preprints p.121, IA-CIS/EFChE, Veldhoven, Oct.(1991).

Taylor G.I.; Proc. R. Soc., (London) Vol. A 146. p.501 (1934).

Tjahjadi M., Ottino J.M.; J. Fluid Mech., vol.232, p.191 (1991).

Tomotika S.; Proc. R. Soc., (London) Vol. A 150, p.322 (1935).