

Nemlineáris viszkoelasztikus folyadék reometriai szimulációja végeselemes módszerrel

Tóth-Molnár Gábor János

Fizikus MSc szakos hallgató
Szegedi Tudományegyetem
Természettudományi és Informatikai Kar

Témavezető:

Dr. Czirják Attila

tudományos munkatárs, c. egyetemi docens,
SZTE TTIK
Elméleti Fizikai Tanszék

Tartalomjegyzék

I. Bevezetés	3
II. Célkitűzés	4
III. Reológiai háttér	5
1. Folyadékok csoportosítása reológiai tulajdonságaik alapján	6
Newtoni folyadékok	6
Nem-newtoni folyadékok	6
Viszkoelasztikus anyagok	7
2. Maxwell-modell	8
3. Upper-convected Maxwell-modell	10
IV. Reometria	11
1. Oszcillációs tesztek Maxwell-modellel	13
2. A szilikonolaj (polidimetilsziloxán) tulajdonságai	15
3. Time-temperature superposition	16
4. Cox-Merz-szabály	16
5. A méréseinkre használt reométer	17
V. Modellezés COMSOL Multiphysics 4.3b segítségével	19
1. A COMSOL megoldó algoritmusa	20
2. A level-set módszer bemutatása	21
3. A modellezett geometria	22
4. A kezdeti feltételek és peremfeltételek definiálása	25
5. Az upper-convected Maxwell-modell implementálása	25
6. Hálózás, szabadsági fokok	26
7. A COMSOL 4.3b felhasználói felülete	27
VI. Eredmények	28
VII. Összegzés	34
IX. Irodalomjegyzék	35
X. Köszönetnyilvánítás	36
XI. Függelék	37

I. Bevezetés

A folyadékok reológiai tulajdonságainak ismeretére igen komoly igény mutatkozik, hiszen nap mint nap találkozunk, dolgozunk folyadékokkal. Ezeknek az anyagoknak a jellemző paramétereit úgy kell beállítani a gyártás során, hogy teljesíteni tudják azokat a követelményeket, amelyekre tervezik őket, elviseljék azokat a körülményeket, amelyek a használat során előfordulnak. A folyadékok jellemző reológiai paramétereit rotációs reométerekkel lehet a legpontosabban megmérni a szokásos alkalmazási követelmények esetén, de a viszkozitás mérésére széles körben használnak például kapilláris viszkozimétereket is.

A szilikonolajokat (PDMS) széles körben használják az alapkutatótól az ipari alkalmazásokig, ezért reológiai paramétereik mérése és modellezése is alapvető fontosságú sok felhasználási területen. Egyik speciális alkalmazásuk a belsőégésű motorok főtengelyének (vagy egyéb tengelyek) végére szerelt torziós lengéscsillapítóban kap szerepet [1]. Ez az alkatrész kettő, egymásba ágyazott forgástestből, továbbá a közöttük lévő teret kitöltő magas viszkozitású szilikonolajból áll. A tengelyek torziós lengéseinek hatására a szilikonolajban nyírási deformáció lép fel, ami a szilikonolaj viszkoelasztikus tulajdonságainak köszönhetően kontrollált módon elnyeli a torziós lengések energiáját, azaz a mechanikai energia disszipálódik, termikus energiává alakul át.

A szilikonolaj viszkozitása függ a nyírási sebességtől és a hőmérséklettől, továbbá ez az anyag elasztikus tulajdonságokkal is rendelkezik. Ezek együtt nemlineáris viszkoelasztikus viselkedést eredményeznek, aminek a pontos ismerete nélkülözhetetlen a komplexebb alkalmazások esetén. Ehhez a szilikonolaj konstitúciós egyenletét kell ismerni. Mivel a PDMS egy nemlineáris viszkoelasztikus folyadék, kialakul benne a nyírás irányára merőleges mechanikai feszültség is. Ennek következtében a folyadék felkúszik a reométer mérőszárára (Weissenberg – effektus). Fontos kérdés, hogy a kúszás mértéke mennyire befolyásolja a mérési folyamatot illetve annak eredményét, ezért erre egy számítógépes szimulációval kerestük a választ.

Az utóbbi évtizedekben a végesselemes szimulációk széles teret hódítottak maguknak a számítógépek teljesítményének gyors növekedésével. A mérnöki gyakorlat mellett a műszaki- és természettudományokban is fontos szerepe van a szimulációknak. A fizikai paraméterek könnyen változtathatóak, akár csak a geometria, ugyanis a szimulációk virtuálisan, számítógépen történnek. Ennek következtében egy költséghatékony, gyors megoldás a tesztelésre, illetve a fontos paraméterek optimalizálására. Természetesen a prototípusok gyártását nem helyettesítheti egy végesselemes szimulációt használó szoftver, viszont a gyártandó prototípusok számát jelentős mértékben képes csökkenteni.

II. Célkitűzés

A munkánk célja egy reométerben történő mérést szimuláló olyan áramlástani modell megalkotása volt, amelyben figyelembe vesszük a folyadékban ébredő, viszkoelasztikus feszültségtenzorból származó térfogati erőket, amelyek a Weissenberg-effektus néven ismert, a folyadékfelszín jelentősen eltorzító hatásért felelősek. Fontos kérdés ugyanis, hogy a pontos reometriai méréseket hogyan befolyásolja ez az effektus. További kérdés, hogy lehet-e ezt a hatást geometriai paraméterek (például élek görbületi sugarai) változtatásával minimalizálni.

A reométerben előidézett áramlásra COMSOL Multiphysics 4.3b programban készítettünk végeselemes szimulációt.

III. Reológiai háttér

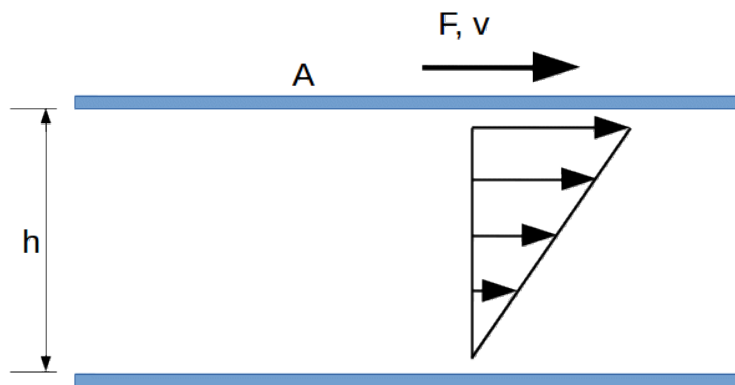
A reológia az anyagok folyásával és deformációjával foglalkozó tudományág [2, 3]. Az alakváltozást létrehozó nyírófeszültség és a deformáció közötti összefüggést vizsgálja. A reológia főleg a folyadékok, illetve puha szilárd testek (soft matter) folyását tanulmányozza. Elsősorban azokra az anyagokra koncentrál, amelyek viselkedését nem lehet egyszerűen, lineáris egyenlettel leírni. Ezeknek a folyadékoknak, puha szilárd anyagoknak az egyszerű áramlását vizsgálja azért, hogy a fontos anyagi paraméterek mérhetővé váljanak, így ezeknek a jellemzőknek az ismeretében igen bonyolult áramlások, deformációk is leírhatóak legyenek. A reológia szó a görög “panta rei” szókapcsolatból származik, miszerint “minden folyik”. A tudományág elnevezését Eugene Cook Bingham, a Lafayette College Kémia Tanszékének professzora és vezetője adta.

A reológia legfontosabb két alapmennyisége a nyírófeszültség, illetve a nyírási sebesség; az [1. ábrán] azokat a mennyiségeket láthatjuk, amelyekből a fentiek származtathatóak. Ezt legegyszerűbben az ún. *two plate model*lel lehet szemléltetni. A két párhuzamos lemez (csak a felső mozgatott) között lévő folyadékra a nyírási sebesség a következő összefüggéssel írható:

$$\dot{\gamma} = \frac{\partial v}{\partial h} = \left[\frac{1}{s} \right]$$

amely a felső lemez sebességének és a lemezek távolságának a hányadosa. Ez a sebességgradiens. A nyírófeszültség egyszerűen az egységnyi felületre eső nyíróerő:

$$\tau = \frac{F}{A} = [Pa]$$



[1. ábra] Két lemez közötti sebességgradiens

A reológiában a konstitutív egyenlet teremt kapcsolatot a nyírási sebesség és a nyírófeszültség között. Általános alakban:

$$\tau(t) = f(\dot{\gamma}(t))$$

A különböző anyagok esetében ezen fizikai mennyiségek közötti függvénykapcsolat más és más, sok esetben igen bonyolult is lehet.

III./1 Folyadékok csoportosítása reológiai tulajdonságaik alapján

Newtoni folyadékok

Azokat a folyadékokat, amelyekre igaz az, hogy a nyírási sebesség és a nyírófeszültség között egyenes arányosság áll fenn, newtoni folyadékoknak nevezzük. Az arányossági tényező a dinamikai viszkozitás, amely az adott folyadékra jellemző, állandó érték. Newtoni folyadék konstitutív egyenlete:

$$\tau = \eta \cdot \dot{\gamma}$$

Például a víz és egyes olajok dinamikai viszkozitása konstans, tehát a fenti formulával leírhatóak a nyírás hatására ébredő mechanikai feszültségek.

Nem-newtoni folyadékok

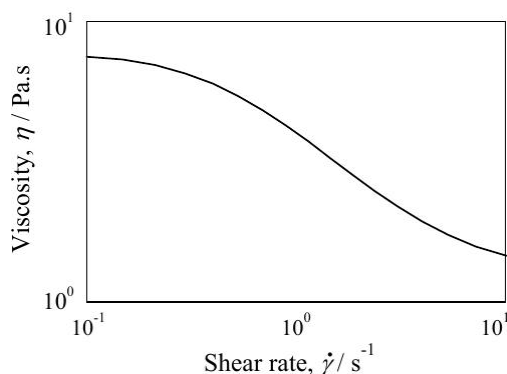
A nem-newtoni anyagok esetén a viszkozitás nem egy állandó érték, tehát a nyírási sebesség és a nyírófeszültség között nemlineáris kapcsolat áll fenn, azaz az egyenes arányosság nem teljesül. Így a viszkozitás függvénye a nyírási sebességnek. Ez alapján a konstitutív egyenlet:

$$\tau = \eta(\dot{\gamma}) \cdot \dot{\gamma}$$

A nem-newtoni folyadékok családját további kettő részre oszthatjuk. Az ún. dilatáló (shear thickening) anyagok viszkozitása nő, amennyiben növeljük a nyírófeszültséget. A hétköznapi életből vett kukoricakeményítő és víz keveréke például dilatáló folyadék. Miután az áramlási tér szálakká és rétegekké rendezi a részecskéket, megfelelően magas nyírási sebesség, és -feszültség értéknél a rendezettség megszűnik, a nyírás hatására csomók keletkeznek, illetve a továbbiakban a szálak már nem párhuzamosak az áramvonalakkal.

Ezen a családon belül a másik részt az ún. pszeudoplasztikus (shear thinning) folyadékok alkotják, amelyekre azért térek ki, mert a szimulált folyadék is ilyen. Ezeknek az anyagoknak a viszkozitása csökken, ha a nyírási sebesség nő. Ilyen például a majonéz. Megfelelő reométer használatával lehetőség adódik struktúrált folyadékok viszkozitásának közvetlen mérésére. Például a polimer oldatok, az emulziók és a diszperziók ilyen anyagok. A viszkozitás egyértelmű függvénye az alkalmazott nyírási sebességnek és a -feszültségnek. Alacsony nyírósebesség, illetve -feszültség

értékek esetén a viszkozitás konstans, értékét η_0 -al jelöljük, és szakirodalom szerint *zero – shear viszkozitásnak* hívjuk. Amennyiben növeljük a nyírósebesség vagy -feszültség értékét, egy bizonyos pontnál csökkenni kezd a viszkozitás és egyenletes csökkenést mutat logaritmikus skálán, tehát hatványfüggvény szerint viselkedik; ez a [2. ábrán] látható. Tehát azok a shear-thinning folyadékok, amelyek viszkozitása csökken a nyírósebesség vagy -feszültség függvényében. Ezt a jelenséget nem szabad összekeverni a tixotrópiával, amely során a viszkozitás szintén lecsökken, de nem a nyírás “erőssége” miatt, hanem a nyírási idő hossza miatt.



[2. ábra] Glükózsirupban hígított poliakrilamid szuszpenziók

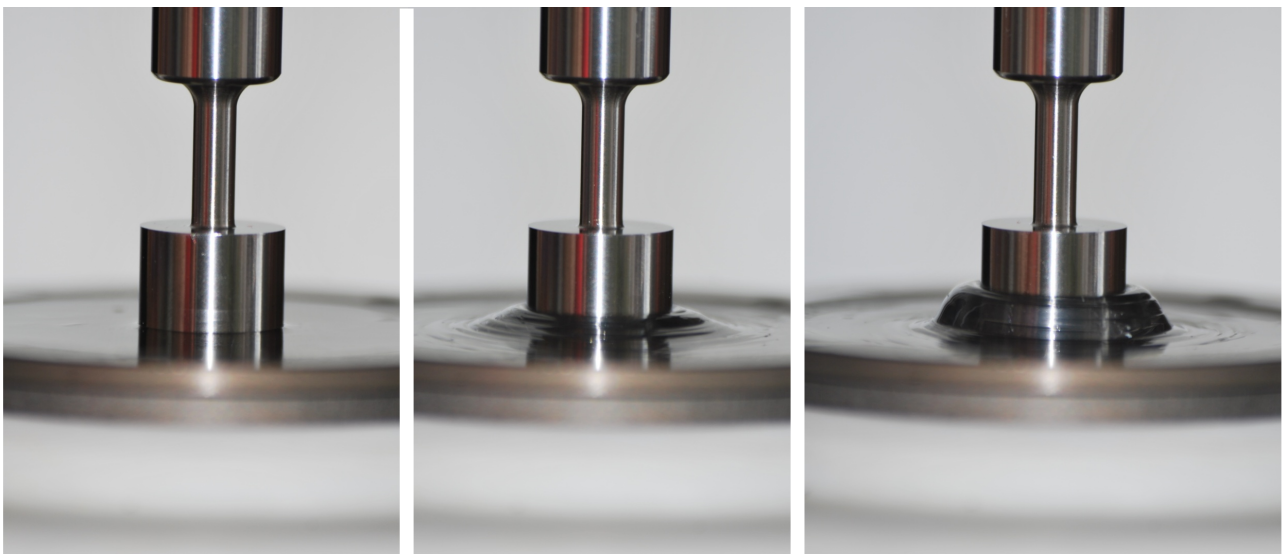
nyírási sebesség – viszkozitás függvénye

Ha a mérésre használt reométer paraméterei lehetővé teszik, hogy magasabb nyírósebesség, -feszültség értékeknél is lehetőség legyen mért adatok gyűjtésére, akkor egy második konstans régió is megfigyelhető a viszkozításban, amelyet η_∞ -nel jelölünk. Ezek szerint kettő korlátozó newtoni viszkozitás érték létezik, η_0 és η_∞ , amelyeket hatványfüggvény által leírt tartomány szeparál el egymástól. Vegyük figyelembe, hogy a legtöbb kutatásra használt reométer nyírósebesség tartománya hozzávetőlegesen 0.1 és 10^3 s^{-1} közé tehető. Ez a legtöbb polimer folyadék esetén nem elég széles ahhoz, hogy a felső tartományban is lehessen méréseket végezni, azaz nem látszik a konvergencia η_∞ -hoz. Nyilvánvaló, hogy ha a mérési határ a nagyobb nyírási értékek felé tolódik el, akkor az alsó határ (η_0) közelében nem lehet mérési pontokra számítani. Utóbbi állítás főleg emulziókra és diszperziókra áll fenn.

Viszkoelasztikus anyagok

A viszkoelasztikus anyagok kitüntetett figyelmet kapnak, mivel ezek a folyadékok nem csak viszkózus, hanem rugalmas természetet is mutatnak. Tipikusan azok a folyadékok viszkoelasztikusak, amelyeket makromolekulákból álló láncok építenek fel, esetleg oldatként tartalmaznak ilyet. Ezek a nagy, láncszerű molekulák adják az anyagnak az elasztikus, rugalmas jelleget, mivel egy rugóhoz hasonlóan összenyomhatóak és kifeszíthetőek. A viszkózus tulajdonság

pedig abból következik, hogy ezek a molekulák képesek elmozdulni egymáson, mint a folyadékok alkotórészecskéi. Viszkoelasztikus folyadékok speciális körülmények között igen különös tulajdonságokat mutatnak. Például, ha ilyen anyagban egy szár adott sebességgel forog, akkor a folyadék, a várt eredménnyel szemben felkúszik a rúdra, ezt *Weissenberg-effektusnak* nevezzük. Ez a jelenség azzal magyarázható, hogy a nyírás irányára merőleges irányú nyírófeszültségek is fellépnek, amelyek ún. *normál feszültségek* (*normal stress*) megjelenéséhez vezetnek. A [3. ábrán] három különböző időpillanatban készült fényképet láthatunk a vizsgált anyag Weissenberg-effektusáról. Az első fotón a mérőfej nem forog; a további képeken kisebb, illetve nagyobb szögsebességgel forog a viszkoelasztikus folyadékban.



[3. ábra] Polidimetilsziloxán felszínét torzító Weissenberg-effektus

III./2 Maxwell-modell

Lineáris viszkoelasztikus folyadékok esetében a dinamikai viszkozitás még newtoni viselkedést mutat, de időben változó nyírási sebesség vagy nyírófeszültség esetén már megjelenik az elasztikus tulajdonság hatása. Ilyen folyadékok leírására egy széles körben elterjedt és gyakran alkalmazott koncentrált paraméterű modell az úgynevezett Maxwell-modell. A modellben két ideális test található: egy tökéletesen rugalmas és egy tökéletesen viszkózus. Ezek a testek egymással sorosan vannak kötve. Mivel a Maxwell-modell rugóállandója és viszkozitása nem függ a nyírófeszültségtől, a rendszer lineáris.

Írjuk fel a tökéletesen rugalmas Hooke-testre és a tökéletesen viszkózus newtoni testre érvényes konstitutív egyenleteket!

$$\tau(t) = -k \gamma(t)$$

A Hooke-test feszültsége (τ) és nyírása (γ) között a rugóállandó (k) teremt lineáris kapcsolatot. Azonban a newtoni test esetén a feszültség (τ) nem a nyírással arányos, hanem a nyírási sebességgel ($\dot{\gamma}$), méghozzá a dinamikai viszkozitás (η) az arányossági tényező:

$$\tau(t) = -\eta \dot{\gamma}(t)$$

Mivel a Maxwell-modellben e két ideális test sorba van kötve, ezért a newtoni- és Hooke-test nyírási sebességei összeadódnak:

$$\dot{\gamma}(t) = \dot{\gamma}_N(t) + \dot{\gamma}_H(t)$$

Fejezzük ki a tökéletesen viszkózus és rugalmas testekre felírt egyenletekből a nyírási sebességeket. Ekkor a Maxwell-modellre az alábbi konstitutív egyenlet adódik:

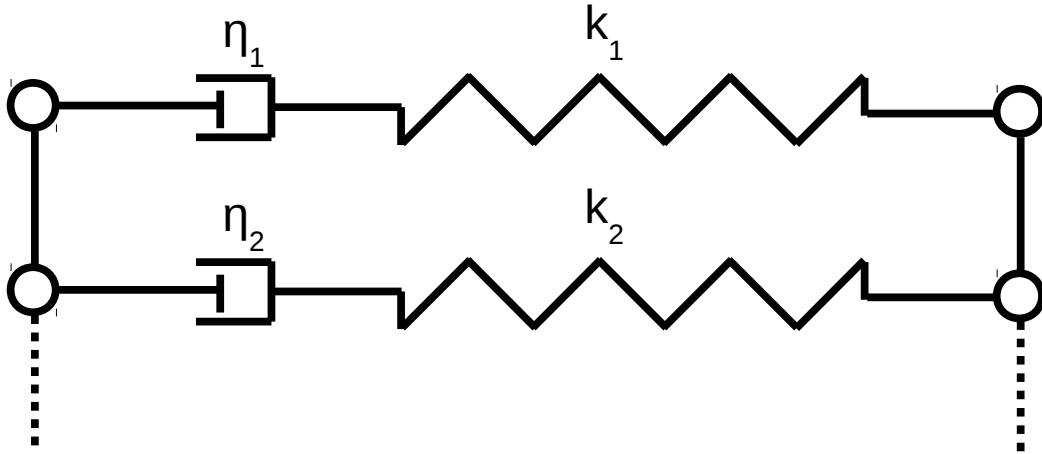
$$\tau(t) = \eta \dot{\gamma}(t) - \frac{\eta}{k} \ddot{\tau}(t)$$

A Maxwell-modellt a [4. ábrán] látható elrendezéssel szokás szemléltetni:



[4. ábra] Egyelemű Maxwell-modell sematikus vázlata

Sok lineáris viszkoelasztikus folyadékot, azonban nem lehet egyelemű Maxwell-moddellel kellően jól leírni, ezért több egyelemű modellt kell párhuzamosan kapcsolni. Így több viszkozitás-, illetve rugóállandó-értékhez jutunk, amelyekkel tetszőleges pontossággal jellemezhető egy lineáris viszkoeleasztkus folyadék, ha elegendő elemszámúnak választjuk a modellt. A Maxwell-modell elemszámán azt az egyszerű mennyiséget értjük, amely megmondja, hogy hány darab rugó – csillapító pár szerepel benne. A többelemű Maxwell-modell elrendezése az [5. ábrán] látható:



[5. ábra] Többelemű Maxwell-modell sematikus vázlata

A mérések során a rugalmas- és viszkózus tulajdonságokat legkönnyebben rotációs reométerekkel lehet mérni, ugyanis ezek a berendezések képesek ún. SAOS (Small Amplitude Oscillatory Shear) tesztek elvégzésére.

III./3 Upper-convected Maxwell-modell

Ha túl akarunk lépni a ún. *koncentrált paraméterű* konstitúciós egyenleten, és figyelembe akarjuk venni az anyagi egyenletben a feszültség és a nyírási sebesség helytől való függését is, akkor a *nagy deformációk elmélete* alapján az idő szerinti deriváltat nem elegendő a *hidrodinamikai deriválttal* helyettesíteni, hanem további korrekciós tagra is szükség van [3]. Az ezeket a korrekciókat is tartalmazó mennyiségeket a szakirodalomban *upper-convected*- vagy *lower-convected* deriváltaknak nevezik, mi ebben a dolgozatban csak az előbbivel foglalkozunk. Az upper-convected derivált definíciója az $\mathbf{u}$ sebességmező segítségével a következő:

$$\overset{\nabla}{\underline{\underline{\underline{A}}}} \equiv \frac{D \underline{\underline{\underline{A}}}}{Dt} - (\nabla \mathbf{u})^T \cdot \underline{\underline{\underline{A}}} - \underline{\underline{\underline{A}}} \cdot \nabla \mathbf{u}$$

amelyben

$$\frac{Df}{Dt} \equiv \frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla f$$

Ha többelemű Maxwell-modellből készítünk az upper-convected derivált segítségével térfüggő Maxwell-modellt, akkor ennek egyenletei az alábbi parciális differenciálegyenletek.

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \rho (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = \nabla \cdot [-p \cdot \mathbf{I} + \boldsymbol{\tau}] + \mathbf{F}$$

$$\boldsymbol{\tau}_j + \frac{\eta_j}{k_j} \overset{\nabla}{\boldsymbol{\tau}}_j = -\eta_j (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T)$$

$$\frac{\nabla}{\tau_j} = \frac{\partial \tau_j}{\partial t} + (\mathbf{u} \nabla) \tau_j - [\tau_j (\nabla \mathbf{u}) + (\nabla \mathbf{u})^T \tau_j]$$

$$\tau = \sum_{j=1}^n \tau_j$$

A fenti eredő τ nyírófeszültség a szokásos mozgásegyenletben, mint extra tenzorként jelenik meg, és ezáltal befolyásolja a folyadék áramlását. Az *upper convected Maxwell-modellben* a feszültség térfogati erő megjelenését idézi elő, amely egy alkalmasan választott reométerrel is mérhető. Ez az erő felel a szabad felület megváltozásáért is, azaz a Weissenberg-effektusért.

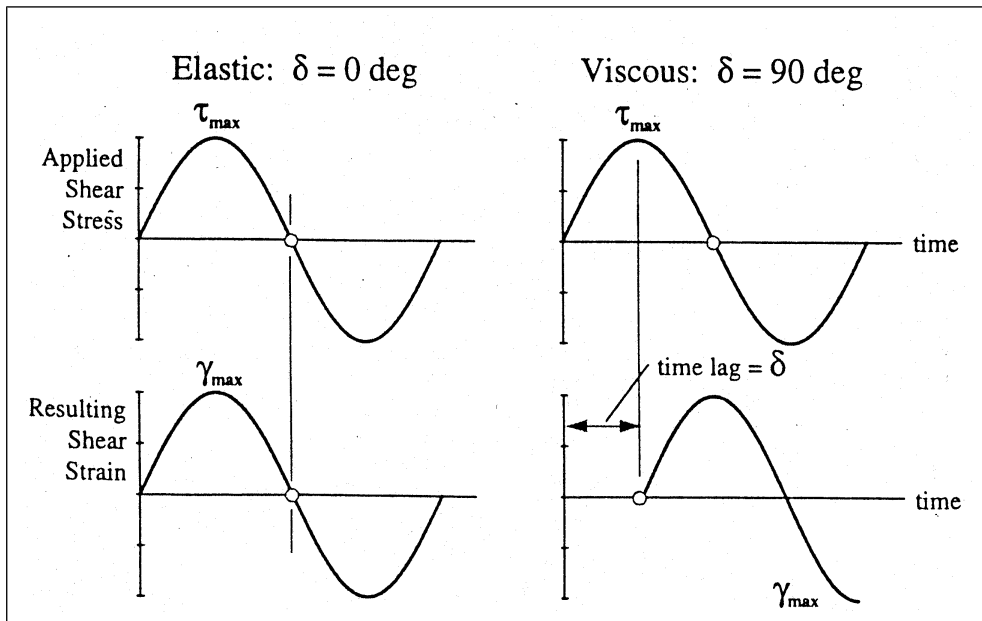
IV. Reometria

Reometriának nevezzük a reológiai mérések gyakorlatát [4]. Egy anyag reológiai paramétereinek megmérését különböző reométerekkel vagy viszkoziméterekkel végezhetjük el. A fentebb említettek szerint, rotációs reométerekkel lehet a legpontosabban megmérni egy lineáris viszkoelasztikus folyadék rugalmas- és viszkózus paramétereit.

A két legalapvetőbb mérési módszer:

Az egyik az ún. nyírási teszt, amely során időben növeljük a folyadékra ható nyírási sebességet és közben mérjük a nyírófeszültséget.

A másik és általában jóval pontosabb módszer az ocillációs teszt. Ilyenkor a folyadékra szinuszos nyírást adunk és vizsgáljuk a nyírófeszültséget. Ha kis amplitudójú oszcillációt használunk (SAOS: Small Amplitude Oscillatory Shear) amely szinuszos feszültséget vált ki a mintából. Az alábbi [6. ábrán] látható, hogy a tökéletesen viszkózus és tökéletesen elasztikus anyagok mekkora fáziskéséssel reagálnak egy időben szinuszos gerjesztésre:



[6. ábra] Elasztikus és viszkózus anyagok válaszáinak fáziskésése időben szinuszos gerjesztésre

A gerjesztés és a válasz megegyező frekvenciájú, de jellemzően a válasz fázisban késik a gerjesztéshez képest. Így a nyírófeszültség időbeli alakjára írhatjuk a következő összefüggést, ahol trigonometriai összefüggéseket is felhasználunk:

$$\begin{aligned}
 -\tau(t) &= \tau_0 \sin(\omega t + \delta) \\
 &= \tau_0 (\sin(\omega t) \cos(\delta) + \sin(\delta) \cos(\omega t)) \\
 &= (\tau_0 \cos(\delta)) \sin(\omega t) + (\tau_0 \sin(\delta)) \cos(\omega t)
 \end{aligned}$$

A fenti egyenlet a SAOS teszt feszültségválasza, amelyben a δ a fáziskésés a gerjesztés és a válasz között, ω pedig a gerjesztés körfrekvenciája. Ilyen trigonometrikus felbontásból láthatjuk, hogy a feszültségnek van olyan része, amely fázisban van a nyírással (azaz arányos $\sin(\omega t)$ -vel), és van egy olyan része is, amely a nyírási sebességgel van fázisban (azaz arányos $\cos(\omega t)$ -vel).

A SAOS teszt alkalmas viszkoelasztikus folyadékok mérésére, azaz olyan anyagok mérésére, amelyek egyszerre mutatnak rugalmas és viszkózus jelleget. SAOS tesztek leírásához célszerű új reológiai paramétereket bevezetnünk: a $G'(\omega)$ tárolási modulus (elasztikus tag) és a $G''(\omega)$ veszteségi modulus (viszkózus tag); melyek így definiálhatóak:

$$-\frac{\tau}{\gamma_0} = G'(\omega) \sin \omega t + G''(\omega) \cos \omega t \quad \text{SAOS teszt anyagi egyenlete}$$

$$G'(\omega) \equiv \frac{\tau_0}{\gamma_0} \cos \delta \quad \text{Tárolási- és veszteségi modulus}$$

$$G''(\omega) \equiv \frac{\tau_0}{\gamma_0} \sin \delta$$

A G' egyenlő a nyírófeszültség amplitúdójának és a nyírás amplitúdójának a hányadosának és a fáziskésés koszinuszának a szorzatával. A G'' analóg módon definiálható, ez azonban a fáziskésés szinuszával van szorozva. A koszinusz függvény 0° -nál maximális és a tökéletesen elasztikus anyag fáziskésése a szinuszos gerjesztés és a válasza között 0° , ebből következik, hogy a G' felel a rugalmas tagért. A G'' pedig a viszkózusért, hiszen a szinuszos függvény 90° -nál vesz fel maximális értéket.

Newtoni folyadékok esetén a G' mindig zérus, és az η dinamikai viszkozitás pedig G''/ω . Tökéletesen elasztikus anyagokra a G' a k rugóállandóval egyenlő, G'' pedig zérus. Viszkoelasztikus anyagokra a G' és a G'' nem nulla értékűek, sőt, függenek az oszcilláció ω körfrekvenciájától. Ilyenkor célszerű bevezetni a komplex viszkozitást:

$$|\eta^*| = \sqrt{\left(\frac{G''(\omega)}{\omega}\right)^2 + \left(\frac{G'(\omega)}{\omega}\right)^2}$$

IV./1 Oszcillációs tesztek Maxwell-modellel

Ilyen reometriai teszteknel a nyírófeszültség kettő határérték között változik az idő szinuszos függvénye szerint. Ha egy ideális rugót rezgetünk, akkor minden frekvenciaértéknél $G'=k$, ahol k a rugó direkciós állandója; és G'' zérus. Amennyiben egy tökéletes csillapítót rezgetünk, a veszteségi modulus (G'') az $\eta\omega$ kifejezés adja; a tárolási modulus (G') pedig mindig nulla. Azonban ezeknek az egyszerű elemeknek a sorba kötött rendszere (Maxwell-modell) egy sokkal komplexebb és érdekesebb viselkedést mutat széles frekvenciatartományon. Matematikailag a következőképpen néz ki:

$$G'' = \frac{\eta \cdot \omega}{1 + (\omega \cdot \hat{t})^2} \quad \text{és} \quad G' = \frac{G \cdot (\omega \cdot \hat{t})^2}{1 + (\omega \cdot \hat{t})^2} \quad ,$$

$$\text{ahol } \hat{t} = \frac{\eta}{G} \text{ a relaxációs idő.}$$

Nagyon alacsony frekvenciákon G'' jóval nagyobb, mint G' , azaz az anyag folyadékszerű természete dominál. Amennyiben a reometriai teszt frekvenciája emelkedik, a G' nagyobbá válik, mint G'' , tehát a szilárdtestszerű viselkedés kezd jellemzővé válni a mintán. Csak az oszcilláció ω

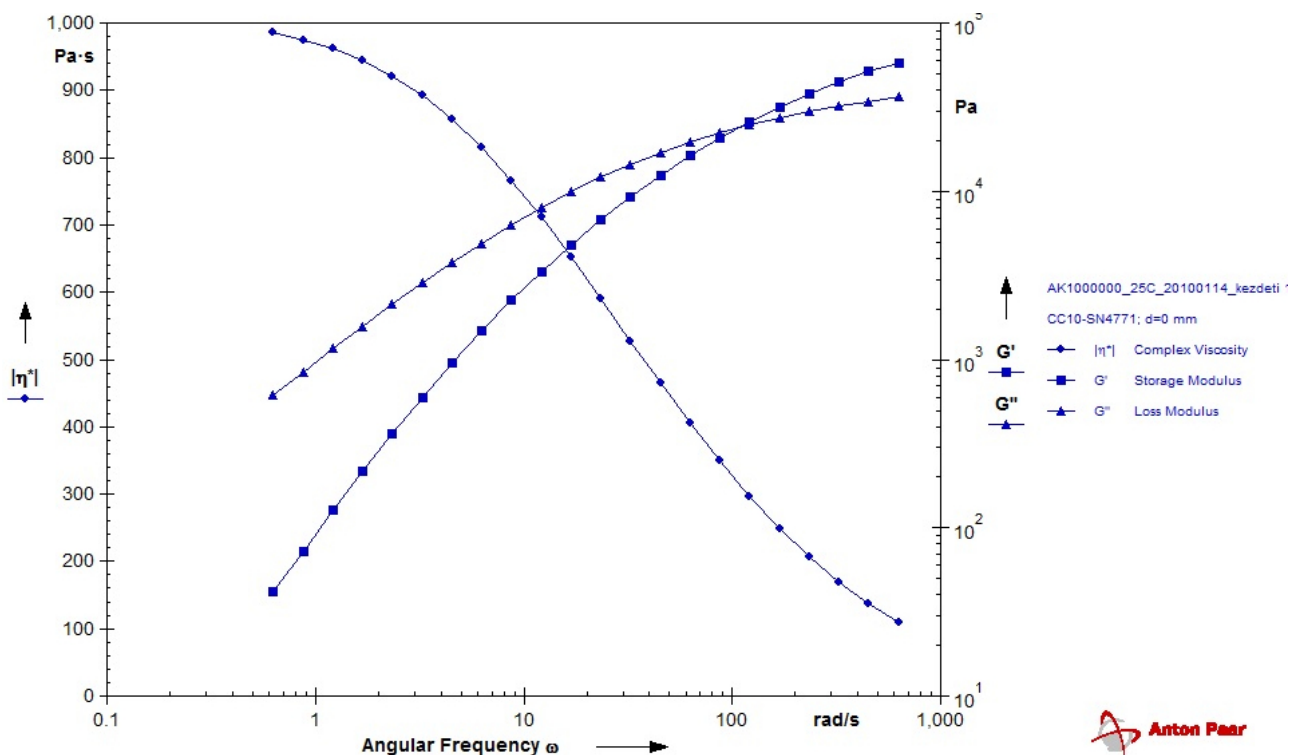
körfrekvenciája és a $\hat{t}$ relaxációs idő egymáshoz viszonyított aránya determinálja, hogy az anyag melyik tulajdonságát mutatja jelentősebben. A Deborah-szám nagyon egyszerű definícióját vezethetjük így be:

$$D_e = \omega \cdot \hat{t}$$

Így az alacsony Deborah-számok esetében mindig a folyadékszerű viselkedés dominál, még a magasabb számok tartományában a szilárdtestszerű természet kerül előtérbe. A $G''(\omega)$ függvénynek maximuma van ω_c -nél; itt G' és G'' függvényértékei megegyeznek.

$$\omega_c = \frac{1}{\hat{t}}$$

Az ω_c az a kritikus körfrekvenciaérték, ahol az anyag folyadékszerű viselkedése szilárdtestszerűbe megy át; azaz ennél a pontnál egyenlő mértékben viszkózus és elasztikus a folyadék, viszont továbbra sem beszélhetünk szilárd testről.

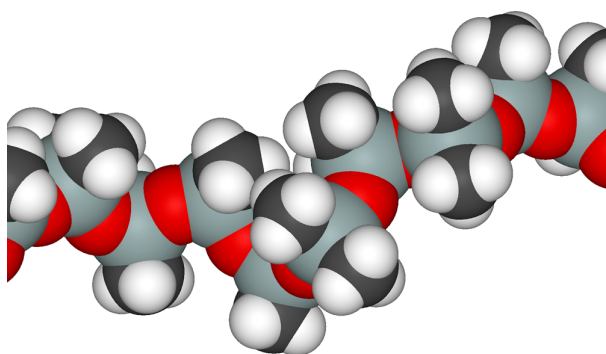


[7. ábra] A PDMS 25°C-on mért folyásgörbéje

A fenti [7. ábrán] látható, hogy a minta zero-shear viszkozitása (♦) 1000 Pa·s 25 °C-on. Továbbá látható a grafikonon a G' tárolási modulus (■), és G'' veszteségi modulus (▲) változása az oszcillációs frekvencia függvényében [5].

IV./2 A szilikonolaj (polidimetilsziloxán) tulajdonságai

A polidimetilsziloxán is olyan folyadék, amelyet makromolekulákból felépülő szálak alkotnak. Ezek a nagy, láncszerű molekulák adják az anyagnak az elasztikus, rugalmas jelleget úgy, hogy ezek a láncok képesek megnyúlni és összehúzódni, mint egy rugó. A viszkózus tulajdonság pedig abból következik, hogy ezek a molekulák képesek elmozdulni egymáson, mint a folyadékok alkotórészecskéi. Munkám során a szilikonolajok családjába tartozó polidimetilsziloxánnal (röviden PDMS) dolgoztam. Ez az anyag egy polimerizált organoszilikon, hétköznapi szóhasználatban szilikon. Összegképlete $CH_3[Si(CH_3)_2O]_nSi(CH_3)_3$, amelyet a [8. ábrán] látható térbeli kalottmodell tesz szemléletessé.



[8. ábra] A polidimetilsziloxán kalottmodellje

Általánosságban elmondható róla, hogy optikailag átlátszó, inert, nem mérgező és nem is gyúlékony, emiatt kedvelt a gyártók körében. Felhasználási területe igen kiterjedt: kontakt lencsétől az egyéb orvosi alkalmazásokon, kozmetikai iparon át az élelmiszeriparig, gépiparig. Az élelmiszeriparban habzásgátlóként alkalmazzák. A gépipar tömítőanyagként és kenőanyagként használja.

Ennek a szilikonolajnak a viszkozitása a tipikusan néhány Pa·s-tól akár több ezer Pa·s-ig terjedő tartományban mozog, amelyet alapvetően a molekula súlya határoz meg; a kívánt érték a vegyipari előállítás során kerül beállításra. A folyadék lineáris viszkoelasztikus jellege tipikusan 3-6 Maxwell-elemet tartalmazó reológiai modellel már jól leírható.

A polidimetilsziloxán teljesít két érdekes és hasznos reológiai szabályt: a TTS-, illetve a Cox-Merz-szabályt.

IV./3 Time-temperature superposition

A viszkoelasztikus tulajdonságok általában erős függést mutatnak a hőmérséklettől, amely számos tényezőnek tudható be [3, 6]. A folyadék relaxációs idejének erős csökkenése a hőmérséklet emelkedésével a legdominánsabb faktor. A második, és kevésbé jelentős pedig az, hogy a modulusok arányosak az abszolút hőmérséklettel. Nagyon sok, de nem minden anyag relaxációs idejeire és modulusaira jellemző, hogy ugyanolyan függvényei a hőmérsékletnek. Ez a tény nagyban egyszerűsíti a reológiai anyagi egyenletek hőmérsékletfüggéséről alkotott képünket, és elvezet a *Time-temperature superposition*-nek nevezett szabályhoz, amelyet részletesen áttekintünk. Tudjuk, hogy a $G'(\omega)$ és $G''(\omega)$ függenek a SAOS teszt körfrekvenciájától, továbbá ezek a hőmérséklettől is függenek különböző λ_i relaxációs időkon, és g_i modulus paramétereken keresztül, amelyek az adott folyadékot leírják. A Maxwell-modell paraméterei így:

$$G'(\omega, \lambda_i, g_i) \quad \text{és} \quad G''(\omega, \lambda_i, g_i)$$

G' -re és G'' -re nagyon fontos tulajdonság igaz: a körfrekvencia és a relaxációs idők mindig együtt jelennek meg, azaz a G' és G'' az $\omega \lambda_i$ szorzatoktól függenek, nem pedig e két paramétertől külön-külön. Ahhoz, hogy lássuk a reológiai függvények hőmérsékletfüggését, vezessük be az $a_T(T)$ függvényt, amely a λ_i relaxációs idők hőmérsékletfüggése. Így írhatjuk:

$$\lambda_i = \tilde{\lambda} a_T$$

amelyben $\tilde{\lambda}$ nem hőmérsékletfüggő. G' és G'' az $\omega \lambda_i$ szorzatoktól függ, tehát:

$$\omega \lambda_i = a_T \omega \tilde{\lambda}_i$$

Amennyiben a SAOS modulusok hőmérsékletfüggése a relaxációs időkon keresztül hat, levonhatjuk a következtetést, hogy $G'(a_T \omega)$ és $G''(a_T \omega)$ görbék nem fognak hőmérsékletfüggést mutatni. Ez jó közelítéssel korrekt.

IV./4 Cox-Merz-szabály

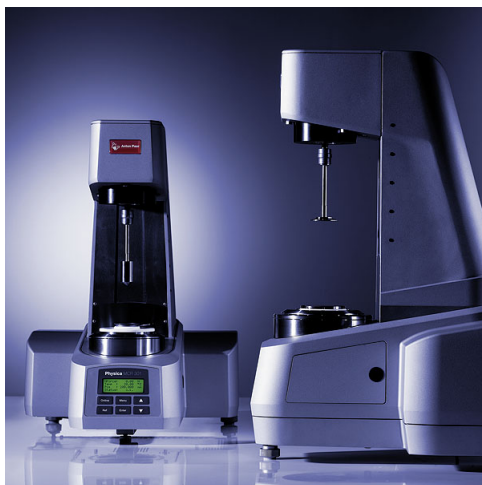
Sok anyag esetén megfigyelhető, hogy a dinamikai viszkozitás nyírássebesség függvénye ($\eta(\dot{\gamma})$) azonos alakú és értékű, mint a komplex viszkozitás oszcillációs körfrekvencia függvénye ($|\eta^*(\omega)|$), amennyiben a megfelelő SI dimenziókat használjuk: $\dot{\gamma} [s^{-1}] = \omega [rad/s]$. Így a Cox-Merz-szabály:

$$\eta(\dot{\gamma}) = |\eta^*(\omega)|_{\dot{\gamma}=\omega}$$

A Cox-Merz-összefüggés ismeretében bevett szokás az általában könnyen mérhető lineáris viszkoelasztikus $\eta^*(\omega)$ görbe felvétele az általában nehezebben mérhető nemlineáris $\eta(\dot{\gamma})$ dinamikai viszkozitás görbe helyett.

IV./5 A méréseinkre használt reométer

A szilikonolaj viszkozitása függ a nyírási sebességtől és a hőmérséklettől, továbbá ez az anyag elasztikus tulajdonságokkal is rendelkezik. Ezek együtt nemlineáris viszkoelasztikus viselkedést eredményeznek, aminek a pontos ismerete nélkülözhetetlen a komplexebb alkalmazások esetén. Ehhez az anyag konstitúciós egyenletét kell ismerni, ami olyan anyagi paramétereket tartalmaz, amelyeket legpontosabban rotációs reométerrel lehet megmérni, ezért a méréseink során egy *Anton Paar* gyártmányú *Physica MCR 101* típusú reométert használtunk, ilyen látható a [9. ábrán]. Ez a berendezés egy ún. rotációs reométer, azaz a mérés egy a folyadékba nyúló forgó szárra ható erő mérése alapján történik.



[9. ábra] Anton Paar Physica MCR 101 típusú rotációs reométerek

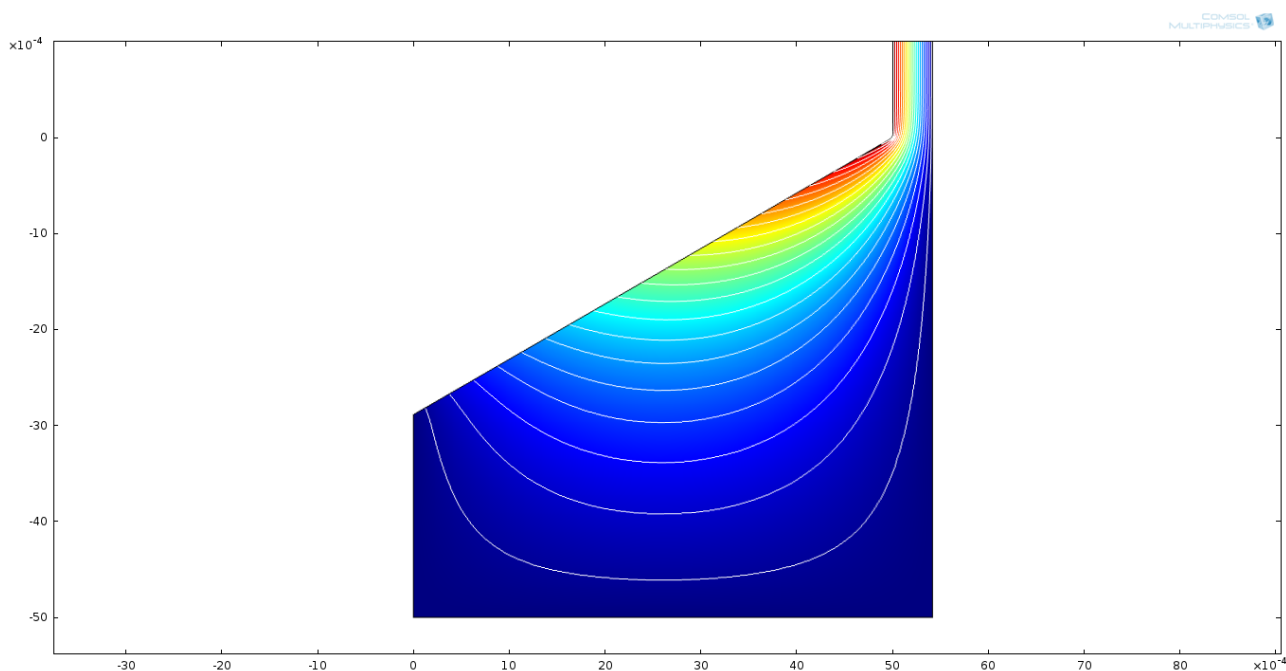
A mérések elvégzésére a CC10 típusú elrendezést választottuk, amelynek sematikus rajzát a [10. ábrán] láthatjuk. Ez egy mérőfejből és egy hozzá tartozó pohárból áll. A kettő együtt koncentrikus hengereket alkot (CC – concentric cylinder), amelyek között történő áramlás neve Taylor-Couette-áramlás. Az áramlási tér egy 0,4 mm szélességű hengergyűrű. A mérőfej átmérője 10 mm – innen az elrendezés neve.



**[10. ábra] A CC10 geometria sematikus rajza
(piros színnel: a mérőfej és mérőpohár közötti folyadék)**

Miután a mérőpoharat jelre töltöttük a mintával, a reométerben rögzítjük. Ez a reométer képes tetszőleges hőmérsékletűre beállítani a poharat; a tranziens állapot után a mérési tartomány és a mérőfej stacionárius, stabil termikus állapotba kerül. A hőmérséklet változtatásához Peltier-elven működő berendezést használtunk. A mérőfejet a reométer helyezi bele a mintába, azonban ezt a felhasználó kontrollálhatja. A mérőfej süllyedési sebessége előre megadható. Erre szükség is van, ugyanis jelentős viszkoelasztikus tulajdonságokat mutató folyadékok esetén, ha túl nagy sebességgel hatolna a mérőfej a mintába, akkor a relaxációhoz szükséges idő hiányában az olaj túlnyomó része kipréselődne a pohárból anélkül, hogy folyadék módjára kitöltené a rendelkezésére álló térfogatot. Akár $\mu\text{m/s}$ nagyságrendbe eső sebesség is indokolt lehet bizonyos anyagoknál.

A Taylor - Couette-áramlás kettő darab, végtelen hosszúságú henger között történő áramlás során kialakuló sebességteret ír le. A CC10 geometria alján kialakított kúp az áramlási tér “szép” lezárására szolgál ([11. ábra]), amelynek hatása a mért értékek felvétele során korrekcióval figyelembe vehető; ezt a korrekciót a reométer szoftvere elvégzi. A henger felső végénél a mérőszár jelenléte miatt erre nincs lehetőség, így itt Weissenberg-effektus jelentkezik. Ez kérdésessé teszi egy nemlineáris viszkoelasztikus folyadék reometriai mérésének a pontosságát.



[11. ábra] COMSOL Multiphysics 4.3b szimuláció a mérőfej alja körül zajló áramlásról

A megfigyelhető Weissenberg-effektust az upper-convected Maxwell-modell differenciálegyenletei írják le, ezek megoldására van szükség annak érdekében, hogy a folyadék térfogati paramétereit megismerjük. Mivel ezek az egyenletek meglehetősen bonyolultak hengerkoordináta-rendszerben leírva, ezért az analitikus megoldásuk helyett végelelemes módszert használva a numerikus megoldásukat kerestük meg.

V. Modellezés COMSOL Multiphysics 4.3b segítségével

A legfontosabb fizikai folyamatok – így például az áramlástani problémák is [7, 8] – a természetben parciális differenciálegyenletekkel írhatóak le. Ebből az okból kifolyólag érdemes ismerni, hogy hogyan viselkedik az adott modell, amelyet a PDE reprezentál. Ezeknek az idő- és térfüggő egyenleteknek minden időpillanatban ki kell elégíteniük az előírt feltételeket a térfogat határán (peremértékeket), illetve $t=0$ időpontban a kezdeti értékkel kell, hogy egyezzen a megoldás. A *FEM*-mel (Finite Element Method) vizsgált mechanikai problémák esetén a variációs elvek használata előnyökhöz vezet a differenciálegyenlet-rendszer közvetlen megoldásával szemben. Például az adott variációs elvhez tartozó funkcionál sokszor szemléletes fizikai tartalommal bír. A funkcionál alacsonyabb rendű differenciálhányadosokat tartalmaz, mint ami a probléma eredeti differenciálegyenlet-rendszerében található. A variációs elvek segítségével a bonyolult peremfeltételek, illesztési feltételek, illetve anyagi egyenletek egyszerűbb formára hozhatóak. Mivel

a szimulációk elvégzésére számítógépeket használunk, ezért a legfontosabb előnye a variációs elveknek az, hogy rájuk támaszkodva numerikusan stabil és konvergens eljárások származtathatóak. Ha a közelítő mezőket alkalmasan választjuk meg, akkor algebrai egyenletrendszerhez jutunk, amelyekre jó hatékonyságú számítógépes eljárások használhatóak. Bevett szokás a peremértékproblémák gyenge megoldásának felépítése. A feladat közelítő megoldásához variációs módszert választva a megoldást gyengítjük azzal, hogy a közelítésre használt függvényektől alacsonyabb rendű folytonossági feltételeket követelünk meg. Azonban a mai FEM szoftverek, így a COMSOL is képes ezek automatizált elérésére.

V/1 A COMSOL megoldó algoritmus

A COMSOL Multiphysics az ún. *vonalmódszert (method of lines)* használja [9]. Ez röviden azt jelenti, hogy az időfüggő parciális differenciálegyenleteket térbeli diszkretizációt felhasználva közönséges differenciálegyenletekké konvertálja és ezeket az eredő egyenleteket oldja meg a szoftver.

Ez az eljárás a végelelemes diszkretizációja az időfüggő parciális differenciálegyenletek megoldásának:

$$\begin{aligned} 0 &= L(U, \dot{U}, \ddot{U}, t) - N_F(U, t) \Lambda, \\ 0 &= M(U, t) \end{aligned}$$

Mielőtt a szoftver megoldaná a rendszert, az algoritmus eliminálja az ún. Lagrange-szorzókat (Λ). Ha a kényszerek $0=M$ lineárisak és függenek az időtől, továbbá ha a kényszererők Jacobi-determinánsa (N_F) konstans, akkor az algoritmus a kényszereket is eliminálja a rendszerből. Egyébként megtartja a kényszereket, így differenciál-algebrai rendszerhez vezet. A COMSOL-ban az IDA illetve az *általánosított- α* módszer is elérhető a fenti közönséges differenciálegyenlet-, vagy differenciál-algebrai egyenletrendszer megoldására.

- Az IDA a Lawrence Livermore Nemzeti Laboratóriumban készült, ez a modernizált implementációja a DASPK megoldónak, amely változtatható rendű, és változtatható lépésközü hátrairányú differencia formulákat használ.
- Az általánosított- α módszer egy implicit, másodrendig pontos eljárás egy α paraméterrel, vagy egy ρ_∞ ($0 \leq \rho_\infty \leq 1$) paraméterrel, amelyek a magas frekvenciák csillapításáért felelnek. Ha a $\rho_\infty = 1$, a módszernek nincs numerikus csillapítása. Ha a $\rho_\infty = 0$, akkor a rendszer numerikus csillapítása maximális; lineáris problémák esetén a legmagasabb frekvenciakomponens már egy lépés alatt kiküszöbölhető. Ez a módszer másodrendű szerkezetanalízis egyenletek megoldására született.

Mivel az időlépés implicit, ezért egy nemlineáris egyenletrendszert kell megoldani minden időpillanatban. Az *IDA* tartalmaz egy *Newton-megoldót* erre a célra. Ez a megoldó egy önkényes lineáris megoldót használ az eredő lineáris egyenletrendszerek megoldására. Akár a Newton-megoldó is használható nemlineáris rendszer megoldására. Így nagyobb kontrollt ad a nemlineáris megoldás folyamatára: beállítható a nemlinearitás toleranciája, a csillapítási tényező, a Jacobi-determináns újrakalkulálásának gyakorisága, illetve további opciók érhetők el a megoldó hatékonyságának növelésére.

A Newton-iterációban a fenti rendszer linearizációja:

$$E \ddot{V} + D \dot{V} + KV = L - N_F \Lambda$$

$$NV = M,$$

ahol

$$K = -\frac{\partial L}{\partial U} \text{ a merevségi mátrix,}$$

$$D = -\frac{\partial L}{\partial \dot{U}} \text{ a csillapítási mátrix, és}$$

$$E = -\frac{\partial L}{\partial \ddot{U}} \text{ a tömegmátrix.}$$

Ha $E=0$, akkor gyakran nevezik D -t a tömegmátrixnak. Ha másodrendű időderiváltakat ($E \neq 0$) tartalmazó problémák esetére használjuk az *IDA*-t, akkor további változók bevezetésére kerül sor azért, mert így elérhető, hogy elsőrendű időderiváltakat tartalmazzon a rendszer. Általánosított- α választása esetén ez nem történik meg, hiszen ez tud másodrendű egyenleteket integrálni. Az új változókat tartalmazó vektor (U_v) új egyenletet szolgáltat:

$$\dot{U} = U_v,$$

ahol U az eredeti változókat tartalmazó vektor. Ez az eljárás duplájára növeli az eredeti közönséges differenciálegyenlet-, vagy differenciál-algebrai egyenletrendszer méretét, de a linearizált rendszert az eredeti méretűre redukálja a

$$E + \sigma D + \sigma^2 K$$

mátrixszal, amelyben σ egy olyan skalár, amely fordítottan arányos az idő lépésközével. A megjelent egyenletből következik, hogy az eredeti U változó mindig differenciálváltozó.

V./2 A level-set módszer bemutatása

Az upper-convected Maxwell-modell szerint az alábbi parciális differenciálegyenletek írják le a szilikonolaj viselkedését. Numerikusan célszerű őket megoldani, így megismerhetők a folyadék térfogati paraméterei.

$$\begin{aligned}\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \rho (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} &= \nabla \cdot [-p \cdot \mathbf{I} + \boldsymbol{\tau}] + \mathbf{F} \\ \boldsymbol{\tau}_j + \frac{\eta_j}{k_j} \nabla \boldsymbol{\tau}_j &= -\eta_j (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T) \\ \nabla \boldsymbol{\tau}_j &= \frac{\partial \boldsymbol{\tau}_j}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \boldsymbol{\tau}_j - [\boldsymbol{\tau}_j (\nabla \mathbf{u}) + (\nabla \mathbf{u})^T \boldsymbol{\tau}_j] \\ \boldsymbol{\tau} &= \sum_{j=1}^n \boldsymbol{\tau}_j\end{aligned}$$

Az ún. *level set* eljárás a két folyadék (amik közül esetünkben az egyik a szilikonolaj, a másik a felette elhelyezkedő levegő) közötti határfelület nyomonkövetésére a Φ *level set* függvényt használja, amely az egyik közegben konstans 1 értékű, a másik közegben pedig konstans 0. A Φ a közegek határán nagyon éles, de sima átmenettel rendelkezik. A Φ *level set* függvény, és ezáltal a határfelület időbeli változását megadó egyenlet az alábbi:

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \Phi = \gamma \nabla \cdot \left(\varepsilon \nabla \Phi - \Phi(1-\Phi) \frac{\nabla \Phi}{|\nabla \Phi|} \right),$$

A sűrűség függ a level set függvénytől:

$$\rho = \rho_1 + (\rho_2 - \rho_1) \Phi,$$

ahol ρ_1 és ρ_2 a közegek sűrűségei.

A dinamikai viszkozitás is hasonló módon számolható a Φ függvényében:

$$\mu = \mu_1 + (\mu_2 - \mu_1) \Phi,$$

ahol μ_1 és μ_2 a közegek dinamikai viszkozitásai.

Itt az első közeg tartozik ahhoz a doménhoz, amelyben $\Phi < 0,5$; és a második folyadék tartozik ahhoz, ahol $\Phi > 0,5$.

V./3 A modellezett geometria

Munkánk célja egy olyan reometriai mérést szimuláló áramlástani modell megalkotása volt, amelyben figyelembe vesszük a folyadékban ébredő térfogati erőket, amelyek a Weissenberg-effektusért felelősek. Fontos kérdés, hogy ez az effektus hogyan befolyásolja a reometriai mérések pontosságát.

A COMSOL Multiphysics *CFD (computational fluid dynamics)* modulja a többi beépített modulhoz hasonlóan használható. A szükséges lépések a következők: a geometriát meg kell rajzolni, ki kell választani a modellezni kívánt folyadékot, az áramlás típusát be kell állítani, definiálni kell a

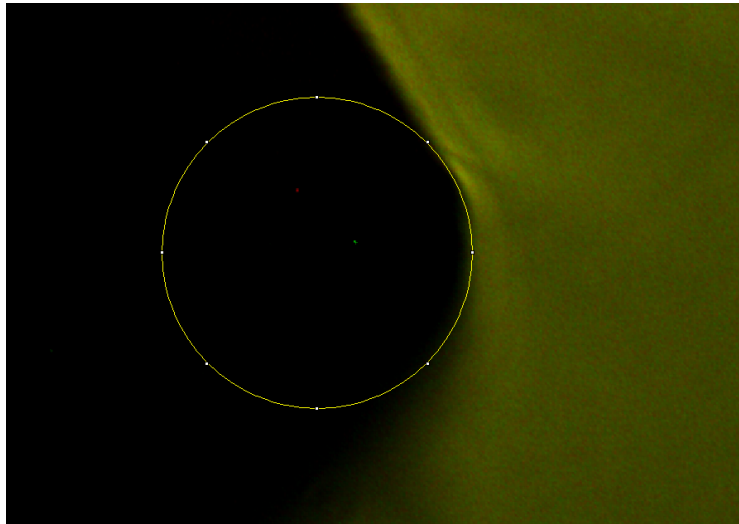
kezdeti-, illetve peremfeltételeket, a végeelemű hálót fel kell építeni, kiválasztani a használni kívánt egyenletmegoldó algoritmust, végül pedig az elért eredményeket értelmezni, feldolgozni, ábrázolni. A hálózás és a megoldók kiválasztása akár automatikusan is történhet, amely a hétköznapi alkalmazások esetén kényelmesen szolgáltat gyors megoldást.

Modellünkben tengelyszimmetrikus geometriát választottunk, mivel a rendszer forgásszimmetriát hordoz magában. A szakirodalom szerint azokat az áramlásokat, amelyek során a fizikai mennyiségek az azimutális (φ) koordinátától függetlenek, azaz invariánsak ebben az irányban, *swirl flow*-nak nevezzük. Az áramlás lamináris a mért térfogatban, ugyanis a koncentrikus hengerek között lévő hézag (0,4 mm) elegendően kicsi, továbbá a szilikonolaj több százszázres mPa·s nagyságrendbe eső viszkozitása túl nagy ahhoz, hogy másodlagos áramlások is kialakulhassanak. A szoftver beépített level set függvénye biztosítja, hogy a szilikonolaj felett elhelyezkedő levegőréteg nem viszkoelasztikus.

A geometria megrajzolásában az egyenletlen bizonytalan tényező a CC10 jelű mérőfej a görbületi sugara volt; a gyártó cég tájékoztatása alapján csak abban lehettünk biztosak, hogy ez kisebb, mint 0,05 mm. Emiatt láttuk célszerűnek a méréshez konkrétan használt mérőfej görbületi sugarának megmérést.

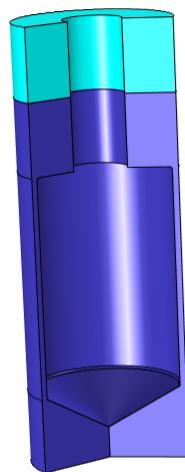
A mérőfej élének a görbületi sugarát optikai mikroszkóp felhasználásával mértem meg. A kontraszt transzmissziós üzemmódban a legélesebb, ennek a módnak a használatát a tanszékcsoporton lévő *Nikon Optiphot 100S* optikai mikroszkóp biztosította. Az okulár helyére CCD kamerát helyeztem, amellyel elektronikus formátumban rögzítettem a képeket. Éles képeket maximálisan 10x nagyítás alatt tudtam felvenni, hiszen az ennél nagyobb törőerősségű lencsék munkatávolsága fél cm alatt van, így az objektív beleütközött volna a mintába. Természetesen a munka befejeztével hitelesítő skálát kellett felvennem a használt nagyítások mindegyikénél. A későbbiek folyamán a nyílt forráskódú *ImageJ* szoftvert használtam a képek elemzésére. Első lépésként a kalibrációs skála segítségével meg kell határozni a távolság-pixel arányt a megfelelő nagyítások esetében, emiatt kellett a hitelesítő skáláról is fényképet készítenem minden használt nagyításnál. A skála képére egy egyenest kell illeszteni, a program ebből kalkulálja a kérdéses arányt. Következő lépésként a mérőfej "sarkáról" készült fotón a görbült élre egy kört illesztettem, amely sugarát az eltárolt távolság-pixel arány függvényében a szoftver kiírja. A görbületi sugár megméréseinek kulcsfontosságú része volt a mikroszkóp helyes beállítása, azért, hogy a lehető legélesebb kontrasztot kaphassam a mérőfejről. A paraméterek értékének kinyerését az *ImageJ* szoftver jelentős mértékben egyszerűsítette. Az alábbi [12. ábrán] látható az általam, mikroszkóp alatt felvett kép a mérőfej görbült sarkáról, illetve az erre illesztett kör. Ennek a körnek a sugara 0,04 mm, amely

nagyon közel van a gyártó által biztosított értékhez, tehát a mérés megbízhatónak tekinthető.



[12. ábra] Mérőfej görbületi sugarának illesztése ImageJ szoftverben

A COMSOL szoftverben a létrehozott geometria részeit doméneknek nevezzük, amelyekhez anyagokat kell rendelni, vagy manuálisan megadni a fizikai paramétereiket. Ez a szoftver rendelkezik beépített adatbázissal, amely a legkülönbözőbb anyagokat (elemeket, vegyületeket, keverékeket) tartalmazza. A használt geometria két domént tartalmaz: levegőt és szilikonolajat. A mérőfejet nem kell használni a modellben, hiszen az egy merev test, így a térfogatában nem történik áramlás, ezért kihagyható a szimulált tartományból. A mérőfej szerepe kimerül, abban, hogy csak a folyadék mozgására vonatkozó peremfeltételeket határozza meg. Az alábbi **[13. ábrán]** látható a sötétkéssel jelölt szilikonolaj és a világoskékkel jelölt levegő metszete három dimenzióban.



[13. ábra] Háromdimenziós metszet a szilikonolaj (sötétkék) és a levegő (világoskék) térfogatáról

A szilikonolajat és a levegőt elválasztó közös határfelület alakváltozásának nyomonkövetésére a COMSOL beépített level set módszerét használtuk. Ez az eljárás képes egymással nem vegyülő, közös, időben változó határréteggel rendelkező folyadékok kétfázisú, lamináris áramlásának szimulálására.

Mivel a mérőrendszer fizikai határai korlátozzák az áramlási teret, ezért ezeket a “kényszereket”, mint a differenciálegyenletek peremfeltételeit definiálni kell.

V./4 A kezdeti feltételek és a peremfeltételek definiálása

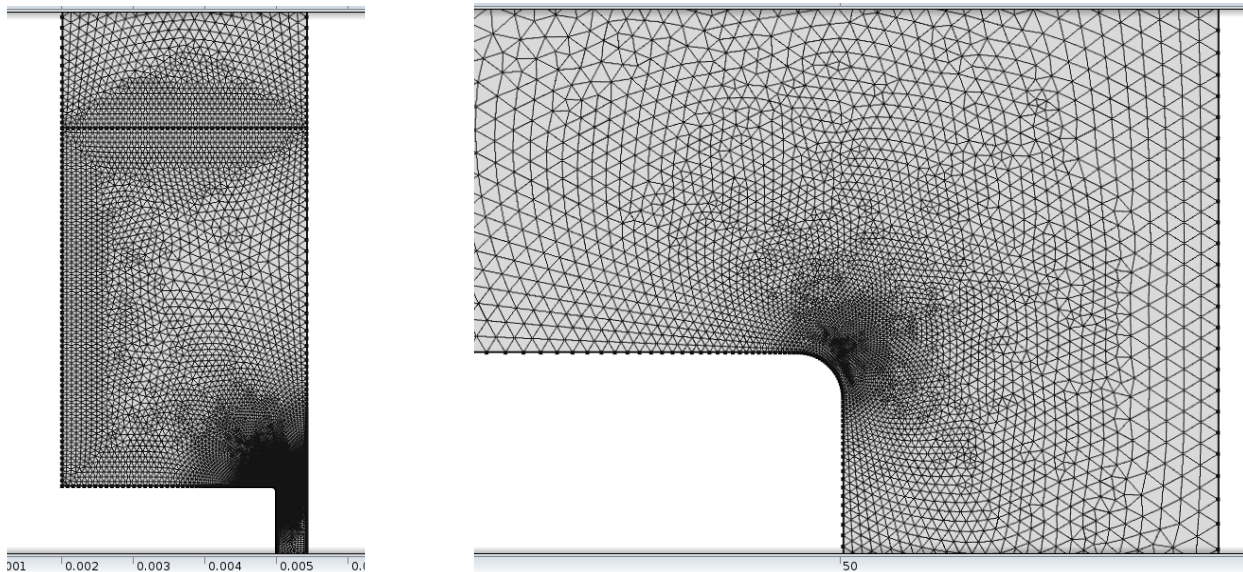
A két fázis (a szilikonolajban és a levegőben) minden pontjában $t=0$ időpontban a nyomás és a sebességtér minden komponense zérus. A mérőfej felületére a sugártól függő kerületi sebességek érvényesek, továbbá a mérőfej nyaka mentén függőleges sebesség is engedélyezett. A szögsebességet ismertnek tekintjük, ugyanis a laboratóriumban lévő reométeren is a felhasználó állítja be a nyírósebességet. A külső fal szögsebessége zérus, radiális irányban nem mozoghat folyadék, azonban függőleges irányban (z -tengely mentén) megengedett a sebesség, tehát a fal mentén ez a peremfeltétel az áramlás sebességére. A mérőpohár alján nem mozdulhat el a folyadék, így a sebességtér mindhárom komponensére zérus a peremfeltétel. A két fázisban az áramlás körkörös, örvényes, ezt figyelembe vettük a modell alkotása során. Az áramlás mellett a szilikonolaj – levegő határfelületen lévő felületi feszültséget és a gravitációt is figyelembe vettük.

V./5 Az upper-convected Maxwell-modell implementálása

A COMSOL egy igen erős előnye a többi végelelemes szoftverrel szemben az, hogy a vizsgált fizikai jelenségek mellé tetszőleges differenciálegyenleteket is meg lehet adni. Erre szükségünk is volt, hiszen a nemlineáris viszkoelasztikus folyadékot háromelemű upper-convected Maxwell-modellel írtuk le. Mivel a modellezett mérőrendszer forgásszimmetriát hordoz magában, ezért nyilvánvalóan a hengerkoordináta-rendszer az alkalmas bázisválasztás. A fent említett Maxwell-modell három elemére három parciális differenciálegyenlet-rendszer írható, amelyeket kettődimenziós hengerkoordináta-rendszerben felvett alakjukban implementáltunk a modellbe. Az így kapott három nyírófeszültség-tenzor komponenseinek összege adja az eredő feszültség-tenzor komponenseit. Ez utóbbi tenzor felel a térfogati erőért, amelyek rendelkeznek a nyírásra merőleges irányú nem-nulla komponensekkel is. Ez okozza Weissenberg-effektust.

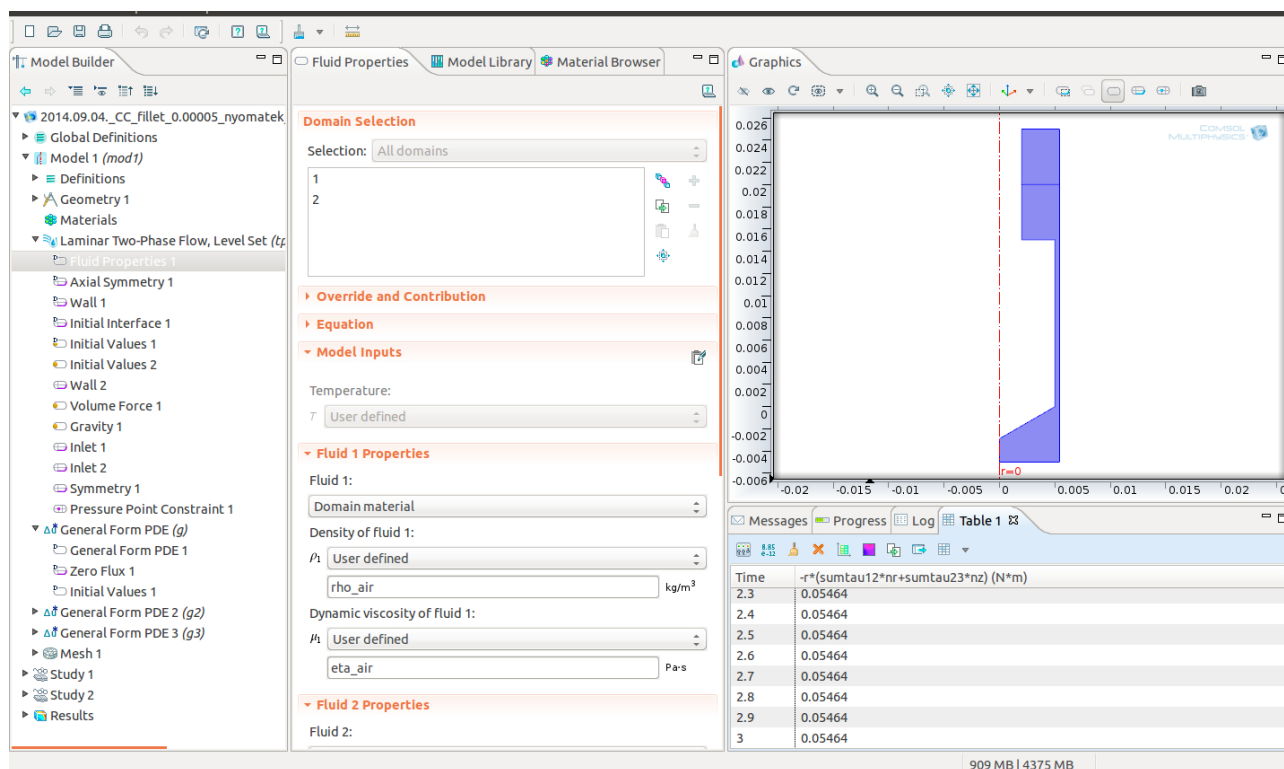
V./6 Hálózás, szabadsági fokok

Csak háromszög elemeket használtunk a hálózásra, ahogyan a [14. ábrán] látszik. 32 548 elemmel fedtük le a teljes geometriát. A végelemek mérete változik a térben: a szilikonolaj és a levegő határfelületén egyenletesnek kell lennie; a mérőfej “sarkánál” pedig nagyon sűrűnek, hiszen itt a fizikai paraméterek igen gyorsan változnak a térben. Minél finomabb a hálózás, annál jobb felbontással modellezhetjük a geometriát. Ilyen beállításokkal a teljes rendszer 1 475 544 szabadsági fokkal rendelkezik. A szimuláció lefutásához 58 órára és 32 GB fizikai RAM memóriára volt szükség.



[14. ábra] A CC10 geometriában lévő folyadék és levegő végeselmes hálója

V./7 A COMSOL 4.3b felhasználói felülete



[15. ábra] A COMSOL Multiphysics 4.3b szoftver grafikus felhasználói felülete

A fenti képernyőfotón ([15. ábra]) látható a COMSOL grafikus felülete. Bal oldalon a *Modellépítő* kapott helyet. Itt találhatóak az ún. *node* -ok, amelyek a modell építőelemeinek tekinthetők. Függvények és változók közötti összefüggések definiálhatóak; a modell más részeiben elég ezekre a definíciókra hivatkozni, nem szükséges az egész összefüggést beírni. Ez a lehetőség az áttekinthetőséget és a könnyű módosítást segíti elő. A modellen belül meg kell adni egy geometriát, amelyet szimulálni kívánunk; később ez a geometriai lesz térben diszkrétizálva. Egy geometriai több doménből is állhat, ahogyan a mi modellünk és kettő alrészéből áll: ez látható a jobb oldalon helyet foglaló ablakban, ahol az ábrák jelennek meg. A geometriához anyagot vagy anyagokat kell hozzárendelni. Egy domén csak egyetlen anyagból állhat. Az anyagokat vagy egy beépített könyvtárból választjuk ki, vagy pedig a saját méréseink által szolgáltatott értékeket (esetleg függvényeket) adjuk meg anyagi paramétereknek. Utóbbi esetben célszerű a fent említett definíciók között elhelyezni ezeket az anyagi jellemzőket. Magunk választjuk ki azokat a fizikai jelenségeket, amelyek részt vesznek a szimulálni kívánt kölcsönhatásban. Ebben a modellben csak lamináris áramlás került implementálásra. A COMSOL lehetőséget biztosít arra, hogy a modellhez ne csak fizikai jelenségeket rendeljünk hozzá, hanem (parciális) differenciálegyenleteket is. Ez a tulajdonsága jelentős előnyben részesíti a többi végesesemes módszert használó szoftverekhez

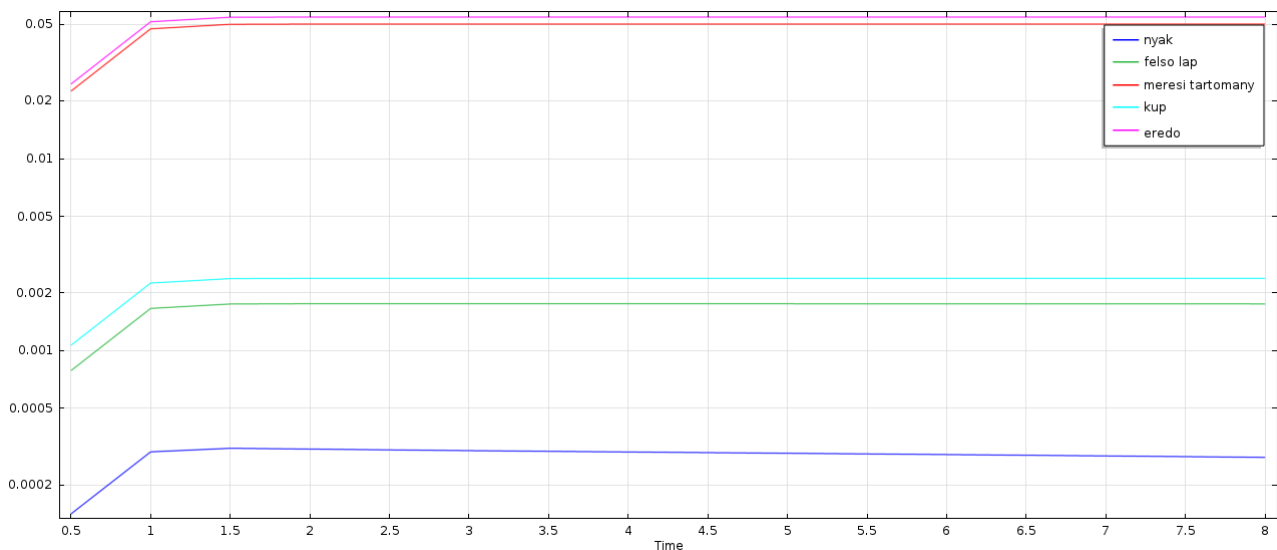
képest. Ugyanis az upper-convected Maxwell-modell három elemére a három parciális differenciálegyenletet így sikerült a modellhez hozzáadni, ezáltal biztosított a szimulációban a Weissenberg-effektus. A szimulálni kívánt fizikai jelenségek szoros csatolásban állnak egymással, ahogyan a valóságban is; - erre utal a *Multiphysics* kifejezés. A továbbiakban a hálózást kell beállítani, ez jelenti a térbeli diszkretizációt, ez a végelem módszer. A hálót úgy célszerű felépíteni, hogy a szűk régiókban minél sűrűbb legyen, ezáltal biztosítva a nagy térbeli felbontást. Azokban a régiókban, ahol nem várunk jelentős gradienst a paraméterekben, jobb a durvább hálózás, hiszen így felgyorsul a futásidő, továbbá a gépigény csökken. A *Study* részben kell beállítani azt, hogy stacionáris-, és/vagy időfüggő megoldásokat keresünk. A haladó beállításoknál kell kiválasztani az egyenletmegoldó algoritmusokat, a toleranciát, a lépésközt, stb. Végül az eredményeknél lehet fedolgozni a megoldást. Készíthetünk adattáblázatokat, egy-, kettő-, háromdimenziós ábrákat; időfüggő esetben akár animációkat is. A középső ablakban a modell alkotóelemeinek a részletes beállításait végezhetjük el. Itt kell megadni, hogy melyik tulajdonság melyik doménhez tartozik; a paramétereket megadhatjuk akár számmal, definícióval, sőt akár még egy csatolt probléma saját változójával is. A jobb oldalon a grafikus ablak alatt találhatóak az üzenetek, folyamatjelzők és a napló.

VI. Eredmények

Fontos kérdés, hogy a polidimetilsziloxán viszkozitásából eredendően mekkora forgatónyomaték hat a mérőfejre. Egy ilyen Taylor-Couette-áramlás esetén a forgatónyomaték könnyen kiszámolható, amennyiben ismert a folyadék feszültség tenzora.

$$M = - \int_F r \cdot (\tau_{r\varphi} \cdot n_r + \tau_{\varphi z} \cdot n_z) df$$

A mérőfej szilikonolajjal érintkező felületére kell integrálni a $(-r)$ -rel szorzott megfelelő komponenseit a stressz tenzornak. Mivel a PDMS-t háromelemű Maxwell-modell írja le, ezért a τ tenzor a három elem saját tenzorainak az összege. Az n_i jelölés, pedig a felület normálisának a megfelelő bázisvektor irányába eső vetületét jelenti. Ezzel a képlettel az összes felületen egyszerre is elvégezhető az integrál számolása.



[16. ábra] A CC10 fej különböző éleire a PDMS által gyakorolt forgatónyomaték

Az [16. ábrán] látható, hogy a mérőfej nyakára elhanyagolható mértékű forgatónyomatékot gyakorol a viszkoelasztikus szilikonolaj. A mérőfej alsó, kúpos részére illetve a felső, vízszintes lapjára közel ugyanakkora nyomatékot fejt ki a folyadék. A szimuláció eredményéből az mondható, hogy a mérési tartományt határoló lapra hat a legnagyobb erővel a polidimetilsziloxán. A rózsaszín görbe a fejre ható teljes nyomatékot mutatja az idő függvényében, ez nem más, mint a többi négy görbe összege. A független-, és függő változó mértékegységei SI rendszerben értendőek, azaz az idő s-ban, a forgatónyomaték $N \cdot m$ -ben.

Az alábbi táblázatban ([1. táblázat]) összefoglaltam, hogy a mérőfej adott görbületi sugarának függvényében mekkora a legnagyobb forgatónyomaték, amely a műszerre hat.

Görbületi sugár [mm]	Forgatónyomaték [N·m]
0.05	0.05464
0.1	0.05459
0.3	0.05427
0.4	0.05408

[1. táblázat] Viszkoelasztikus folyadék által gyakorolt forgatónyomatékok különböző görbületi sugaró mérőfejekre

Látható, hogy a mind a négy görbületi értéknél a forgatónyomaték ezred $N \cdot m$ -re megyegyezik; a többi tizedesjegyen jelentkező eltérés valószínűsíthetően numerikus hibákból ered.

Ahhoz, hogy megtudhassuk, hogy a fenti nyomatékértékek valóban mennyire befolyásolják a méréseket, le kellett futtatnunk olyan szimulációkat is, amelyekben newtoni folyadék áramlását modellezzük. Ilyen szimulált mérések után is ki kellett számolni a szilikonolaj által a mérőfejre gyakorolt forgatónyomatékokat. Azonos feltételek mellett a newtoni folyadék szimulációjának eredményét a következő táblázatban ([2. táblázat]) foglaltam össze:

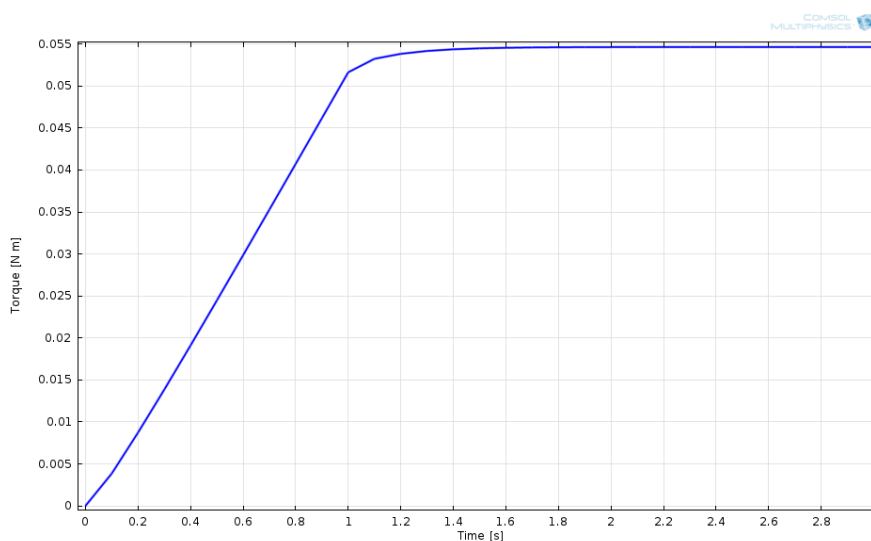
Görbületi sugár [mm]	Forgatónyomaték [N·m]
0.05	0.05461
0.1	0.05456
0.3	0.05424
0.4	0.05405

[2. táblázat] Newtoni folyadék által gyakorolt forgatónyomatékok különböző görbületi sugaró mérőfejekre

Látható, hogy a forgatónyomaték értékek a tizedszázalék pontosan itt is megegyeznek különböző görbületi sugaraknál; sőt, a szimulációk szerint ugyanazok ezek a forgatónyomaték értékek (tizedszázalék pontosan), mint ha viszkoelasztikus folyadékon végeznénk méréseket.

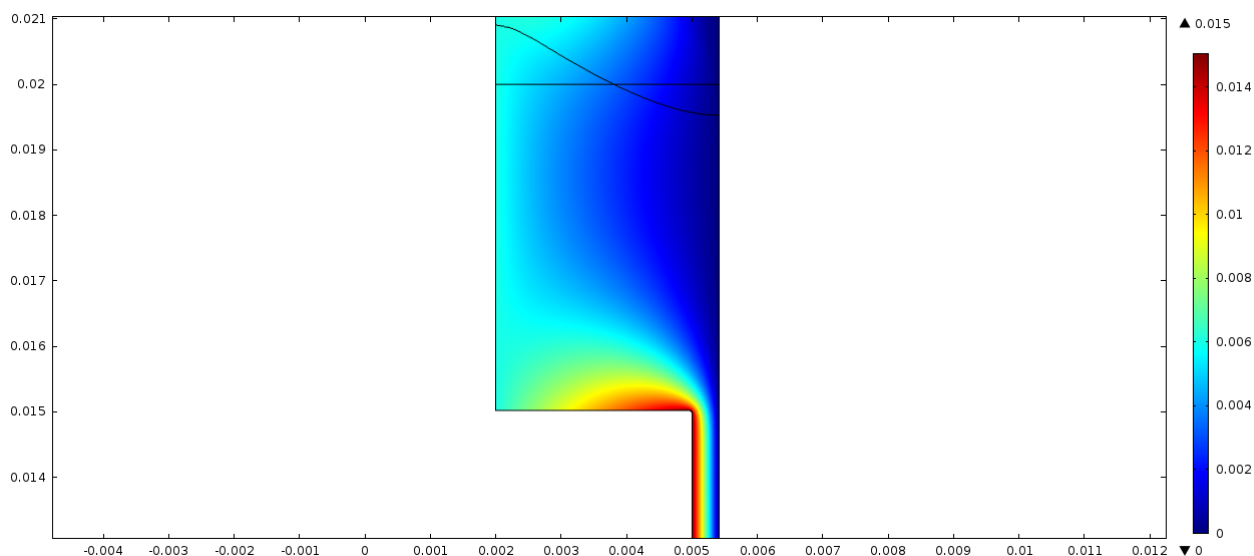
Legfontosabb eredményként ezekből a szimulációkból azt a következtetést vonhatjuk le, hogy viszkoelasztikus folyadékon történő reometriai mérések során az anyagok viszkoelasztikus jellege nem befolyásolja jelentős mértékben a mérés folyamatát, eredményét.

Modellünk szerint az időmérés kezdetével egyidőben indul a mérőfej forgása, amely 1 s alatt eléri a beállított fordulatszámot. Azonban a műszerre ható nyomaték 1 s -nál még nem maximális (ld. [17. ábra]), ez a szilikonolaj viszkoelasztikus természetéből következik.



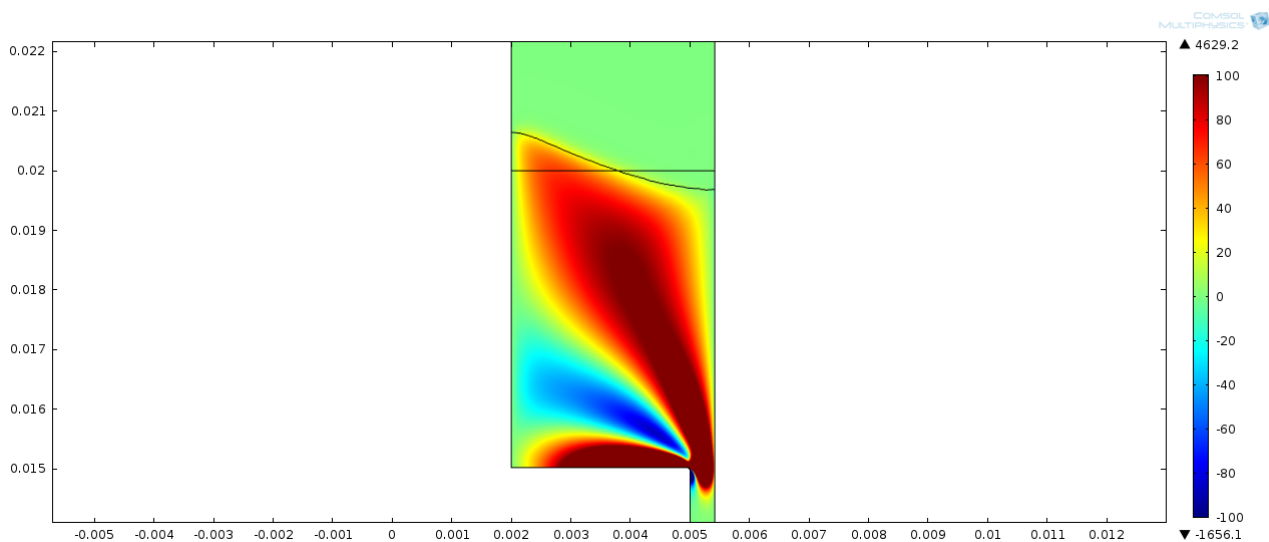
[17. ábra] PDMS által a mérőfejre ható nyomaték szimulációja COMSOL Multiphysics 4.3b szoftverrel

Igaz, hogy elsősorban bennünket a mérőfejre ható nyomaték érdekelt, viszont a szimuláció során az áramlási tér is kiértékelésre került. Az alábbi ábrákon a vízszintes fekete egyenes az eredeti szabad folyadékfelszín, még az íves a Weissenberg-effektustól torzult felület.

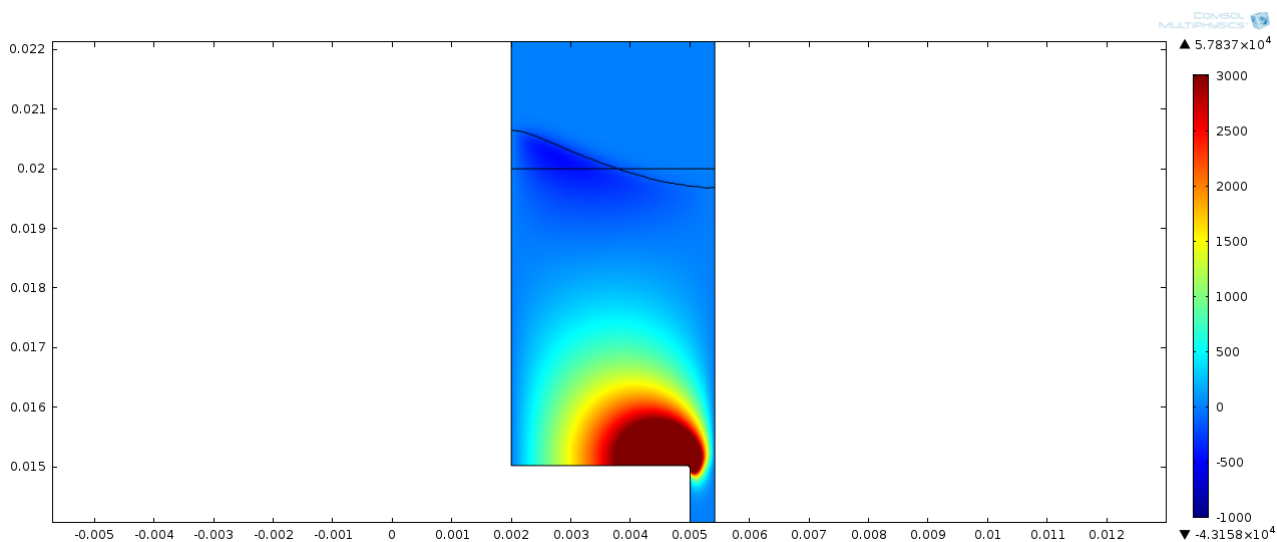


[18. ábra] Az áramlási tér ϕ irányú sebességkomponense és a PDMS felületének torzulása

A [18. ábrán] folytonos színezéssel látható a sebességtér ϕ irányú komponense, illetve a viszkoelasztikus folyadék szabad felzínének torzulása. Megfigyelhető, hogy a mérőfejhez közlelő tartományban a tangenciális sebesség nagy, hiszen a mérőfej kerületi sebessége itt a legnagyobb; a mérőfej nyakánál a sebesség jóval kisebb. A fej palástján a folyadék sebessége pontosan megegyezik a felület kerületi sebességével, amely nem más, mint a szögsebesség és a sugár szorzata. A mérési tartomány határán szintén a fal sebességével egyezik a szilikonolaj sebessége, azaz nem mozog. A felület megváltozásáért (Weissenberg-effektusért) a szilikonolaj belsejében eredő nyírófeszültség a felelős, ugyanis a nyírási sebesség irányára merőleges feszültségkomponenseket is tartalmaz. E feszültségtenzor fontos komponenseiről készült ábrák az alábbiakban bemutatásra kerülnek. A [19. ábra] szemlélteti, τ_{rz} magas értékeket vesz fel a mérőfej sarka felől a felszín irányába. A színskálák SI egységben vannak, azaz N/m^2 dimenzióban.

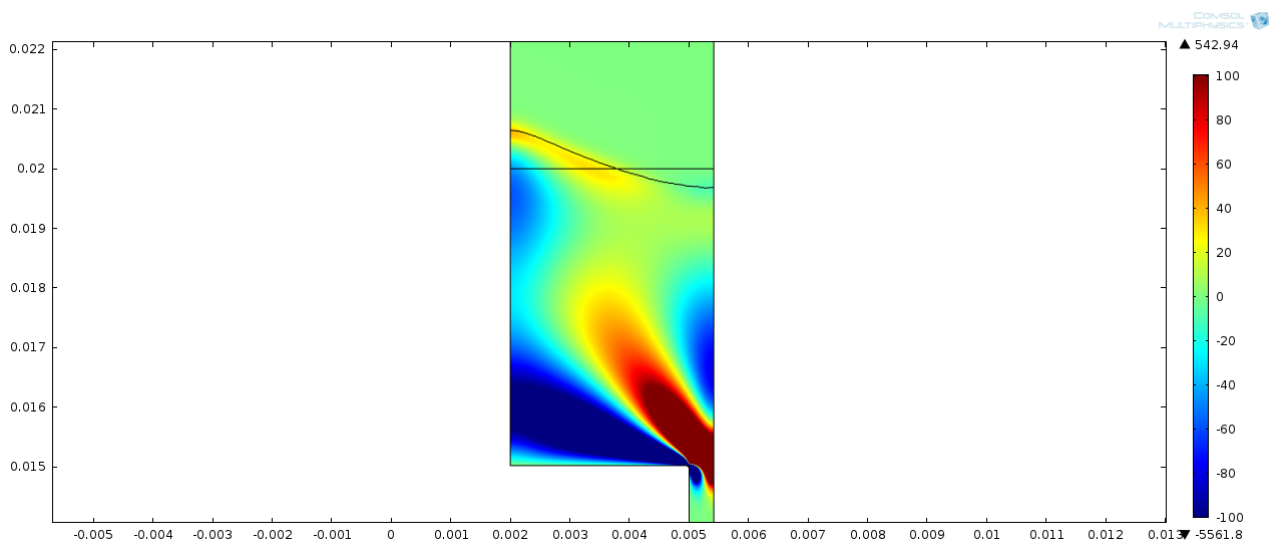


[19. ábra] A feszültségtenzor τ_{rz} komponense és a szilikonolaj felszíne



[20. ábra] A feszültségtenzor $\tau_{\phi z}$ komponense és a szilikonolaj felszíne

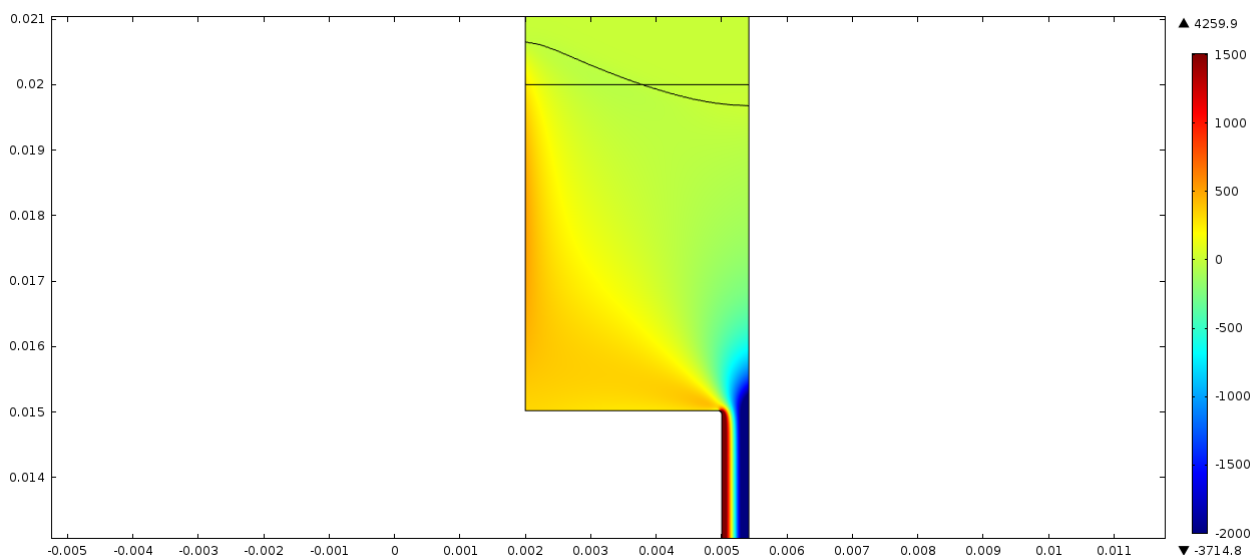
A [20. ábra] alapján látjuk, hogy a $\tau_{\phi z}$ komponens jóval nagyobb feszültségértékeket hoz létre, mint a másik kettő, és a hengerlap feletti tartományban igen jelentős emelőerőt biztosít.



[21. ábra] A feszültségtenzor τ_{zz} komponense és a szilikonolaj felszíne

A mozgásegyenletben az eredő τ nyírófeszültség extra tenzorként jelenik meg, amely befolyásolja a folyadék áramlását. Az upper-convected Maxwell-modelben ez a feszültség olyan térfogati erőt idéz elő, amely felel a Weissenberg-effektus kialakulásáért. A **[21. ábrán]** látszik, hogy a mérőfej sarkánál a feszültségtenzor τ_{zz} eleme igen magas értéket vesz fel, és ívesen tart felfelé a mérőfej szárához az a régió, ahol még nagy ez a komponens.

A **[22. ábrán]** a nyomás térfüggése látható. A szimuláció eredményeként kapott torzult felület kvalitatíve jól visszaadja a mérés során megfigyelhető szilikonolaj-felszínt. Látható, hogy a folyadékszint a kezdeti szinthez (vízszintes fekete egyenes) képest a belső részen megemelkedett (felmászott a mérőfejre), a külső régióban pedig a kezdeti érték alá csökkent.



[22. ábra] A nyomás térfüggése

VII. Összegzés

Az volt a célunk, hogy végesseleemes szimuláció felhasználásával kiderítsük, hogy egy reométerben történő mérést vajon milyen mértékben hamisítanak meg viszkoelasztikus folyadékok tulajdonságaiból származó hatások. Ha a szimuláció kvalitatíve jól visszaadja a folyadék felületét jelentősen eltorzító Weissenberg-effektust, akkor vélhetően megfelelően működik, így megbízhatóan alkalmazható a reológiai paraméterek kinyerésére. Továbbá kérdéses volt az is, hogy a mérésre használt geometria paraméterei okoznak-e szignifikáns változásokat ezekben a hatásokban. Ennek érdekében szükségünk volt valós mérésekre, amelyeket polidimetilsziloxánon végeztünk el egy rotációs reométer segítségével. A végesseleemes szimuláció megalkotása során azzal a problémával szembesültünk, hogy a geometriát nem tudjuk megrajzolni a görbületi sugara nélkül. Erre a sugárra a gyártótól csak egy felső korlátot kaptunk, ezért kézenfekvő döntés volt, hogy a mérésre konkrétan alkalmazott mérőfejet mérjem meg. Ezt optikai mikroszkóp segítségével végeztem, a képeket digitális formában rögzítettem, majd ImageJ képelemző szoftver segítségével értékeltem ki. Az így kapott görbületi sugár alig tért el a gyártó által biztosított felső határértéktől. A szimulált viszkoelasztikus folyadékot háromelemű, upper-convected Maxwell-modellel írtuk le. A COMSOL Multiphysics 4.3b eredményeiből kiszámoltuk a szilikonolaj által a mérőfejre gyakorolt forgatónyomatékat, amelyet összevetettem olyan forgatónyomaték értékekkel, amelyek newtoni folyadék áramlása esetén hatnának a mérőfejre. Ez a különbség nem volt számottevő, így azt mondhatjuk, hogy egy reométerben CC geometriával viszkoelasztikus anyag is mérhető anélkül, hogy a folyadék a természetéből adódóan jelentős mértékben eltorzítaná a mérés eredményeit.

IX. Irodalomjegyzék

- [1] Tóth B, Ailer P, Veress Á, Palkovics L, Torziós lengéscsillapító szilárdságtani végelelemes szimulációja, *A JÖVŐ JÁRMŰVE: JÁRMŰIPARI INNOVÁCIÓ* 3:(4) pp. 45-47. (2011)
- [2] Dynamics of Polymeric Liquids, Bird, Armstrong, Hassager, *John Wiley & Sons, 1987, ISBN: 0-471-80245-X*
- [3] Understanding Rheology, Morrison, *Oxford University Press, 2001, ISBN: 0-19-514166-0*
- [4] A Handbook of Elementary Rheology, Barnes, *University of Wales, 2000, ISBN: 0-9538032-0-1*
- [5] Z. Kőkuti, K. van Gruijthuijsen, M. Jenei, G. Tóth-Molnár, A. Czirják, J. Kokavecz, P. Ailer, L. Palkovics, A.C. Völker, G. Szabó, *High-frequency Rheology of a High Viscosity Silicone Oil Using Diffusing Wave Spectroscopy, Appl. Rheol.* 24 (2014)
- [6] Time-Temperature Superposition – A Users Guide, Dealy, Plazek, *Rheology Bulletin*, 78(2) July 2009
- [7] *Computational Fluid Mechanics and Heat Transfer*, Anderson, Tannehill, Pletcher, *Taylor & Francis, 1997, ISBN: 1-56032-046-X*
- [8] Computational Fluid Dynamics: Principles and Applications, Blazek, *Elsevier, 2001, ISBN: 0 08 043009 0*
- [9] COMSOL Multiphysics Reference Manual, *Version: May 2013, COMSOL 4.3b*

X. Köszönetnyilvánítás

Szeretném megköszönni témavezetőmnek, Dr. Czirják Attilának a modell beállítása során adott útmutatását, szakmai tanácsait. Köszönetet mondok Kőkuti Zoltánnak a mérés és a szimulációk során nyújtott segítségéért. Továbbá megköszönöm Dr. Smausz Kolumbán Tominak, hogy hozzáférést biztosított számomra az optikai mikroszkóphoz. Csanádi Krisztiánt a Weissenberg-effektus profi fotózásáért illeti köszönet.

XI. Függelék

A reometriai méréseket az iparban igen széles körben kedvelt polidimetilsziloxán mintán végeztem el egy Anton Paar rotációs reométerrel. Az analízis során főleg kis amplitúdójú oszcillációs tesztek (SAOS) futtattam, mivel viszkoelasztikus anyagok esetén ez a módszer a legkézenfekvőbb a minta reológiai paramétereinek megmérésére. Több hőmérsékleti értéken is elvégeztem a tesztek, ezek az eredmények a jövőbeli terveink szempontjából fontosak.

A végeselemes szimulációhoz a reométerben lévő minta és levegő térfogatát kellett megrajzolni. A geometriában szereplő szögeket lekerekítettem ún. *fillet*-ek alkalmazásával. A filletek használata a végeselemes szimulációban szinte nélkülözhetetlen a numerikusan stabil megoldások elérésének érdekében, ugyanis a munkám során a lekerekített sarkok körül nagy a fizikai mennyiségek gradiense.

A továbbiakban felmerült a kérdés arról, hogy a filletek sugara milyen mértékben befolyásolja a kialakult áramlási képet. Különböző sugarú lekerekítésekkel újrarajzoltam a geometriát. Annak érdekében, hogy a valós térfogatot modellezhessük, megmértem a mérőfej élének a görbületi sugarát. A mérőfejről Nikon Optiphot 100S optikai mikroszkóp transzmissziós üzemmódjában 10x nagyítás alatt – az okulár helyére helyezett CCD-kamerával – vettem fel képeket. A munka befejeztével a hitelesítő skálát lefényképeztem ugyanilyen beállítások mellett. Ezt követően a képeket a nyílt forráskódú ImageJ képelemző szoftverben értékeltem ki. A hitelesítő skála felhasználásával meghatároztam a távolság-pixel arányt, majd ennek ismeretében körillesztéssel állapítottam meg a mérőfej élének a görbületi sugarát.

Az upper-convected Maxwell-modell tenzorkomponenseit kiszámoltam hengerkoordináta-rendszerben; ezek kerültek a szimulációhoz csatolt parciális differenciálegyenletekbe.

Egy korábbi, COMSOL 3.5a-ban megalkotott modellt újra felépítettem (*preprocessing*) 4.3b-ben, mert az importálás sok hibát okozott, mivel a szoftver fejlesztése során a belső változók átnevezésre kerültek. A geometria hálózásával (mesheléssel) is foglalkoztam azért, hogy a felhasználható RAM memória keretbe beleférjen a szimuláció és optimálisan kihasználja azt. A végeselemes szimulációkat futtattam (*processing*), továbbá az ún. *postprocessing* folyamatot is én végeztem el, amely nem más, mint a szimuláció eredményeinek értelmezése, kiértékelése, forgatónyomatékok kiszámolása felületi integrálokkal, ábrák megrajzolása.