



DISSERTAÇÃO DE MESTRADO EM CIÊNCIAS MECÂNICAS

**ANÁLISE NUMÉRICA E EXPERIMENTAL  
DA REOLOGIA E MICROESTRUTURA  
DE SUSPENSÕES MAGNÉTICAS**

**Adriano Possebon Rosa**

**Brasília, Agosto de 2014**

**UNIVERSIDADE DE BRASÍLIA**  
FACULDADE DE TECNOLOGIA  
DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA MECÂNICA

UNIVERSIDADE DE BRASÍLIA  
FACULDADE DE TECNOLOGIA  
DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA MECÂNICA

**ANÁLISE NUMÉRICA E EXPERIMENTAL  
DA REOLOGIA E MICROESTRUTURA  
DE SUSPENSÕES MAGNÉTICAS**

**Adriano Possebon Rosa**

DISSERTAÇÃO DE MESTRADO SUBMETIDA AO DEPARTAMENTO  
DE ENGENHARIA MECÂNICA DA FACULDADE DE TECNOLOGIA DA  
UNIVERSIDADE DE BRASÍLIA COMO PARTE DOS REQUISITOS  
NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE MESTRE EM  
CIÊNCIAS MECÂNICAS

Banca Examinadora

Prof. Francisco Ricardo Cunha, ENM/UnB \_\_\_\_\_  
*Orientador*

Prof. Rafael Gabler Gontijo, ENM/UnB \_\_\_\_\_  
*Examinador Interno*

Prof. Yuri Dumaresq Sobral, MAT/UnB \_\_\_\_\_  
*Examinador Externo*

## FICHA CATALOGRÁFICA

ROSA, ADRIANO POSSEBON

Análise Numérica e Experimental da Reologia e Microestrutura de  
Suspensões Magnéticas

[Distrito Federal] 2014.

xxi, 148p., 297 mm (ENM/FT/UnB, Mestre, Ciências Mecânicas, 2014).

Dissertação de Mestrado - Universidade de Brasília.

Faculdade de Tecnologia.

Departamento de Engenharia Mecânica.

- |                          |                       |
|--------------------------|-----------------------|
| 1. Suspensões Magnéticas | 2. Reologia           |
| 3. Microestrutura        | 4. Simulação Numérica |
| I. ENM/FT/UnB            | II. Título (série)    |

## REFERÊNCIA BIBLIOGRÁFICA

ROSA, A. P. (2014). Análise Numérica e Experimental da Reologia e Microestrutura de Suspensões Magnéticas. Dissertação de Mestrado em Ciências Mecânicas, Departamento de Engenharia Mecânica, Universidade de Brasília, Brasília, DF, 148p.

## CESSÃO DE DIREITOS

NOME DO AUTOR: Adriano Possebon Rosa.

TÍTULO DA DISSERTAÇÃO DE MESTRADO: Análise Numérica e Experimental da Reologia e Microestrutura de Suspensões Magnéticas.

GRAU / ANO: Mestre / 2014

É concedida à Universidade de Brasília permissão para reproduzir cópias desta dissertação de mestrado e para emprestar ou vender tais cópias somente para propósitos acadêmicos e científicos. O autor reserva outros direitos de publicação e nenhuma parte desta dissertação de mestrado pode ser reproduzida sem a autorização por escrito do autor.

---

Adriano Possebon Rosa

SQN 407, Bloco K, Apto 101. Asa Norte.

70.855-110 Brasília - DF - Brasil.

## **Dedicatória**

*Dedico este projeto ao meu grande amigo Danilo Pereira da Silva, o PSIL, que deixou grande saudade.*

*Adriano Possebon Rosa*

# AGRADECIMENTOS

Gostaria de agradecer primeiramente aos meus pais, José Rosa e Marcia. Que eu possa ter um pouco da humildade e da sabedoria que vocês possuem. Agradeço pelo carinho de sempre e pelo apoio fundamental dado nesses últimos anos às escolhas que eu fiz. Agradeço os infalivelmente diários telefonemas da minha mãe, sempre me trazendo muita paz.

Agradeço à minha irmã Laryssa, pela amizade, pela paciência e por ainda me convidar para as suas festas. Agradeço de coração à dona Celsa e à dona Sylvia. À minha tia Marta também tenho muito que agradecer por esse bom humor contagiante, juntamente com a Laíze, a Gigi e o Alexandre.

Aos amigos de longa data, que não poderiam faltar aqui por todos os bons momentos proporcionados que ficaram ou não na memória, Bianca, Chico, Fábio, Fádwa, Jéssica, Luís, Moraes, Nelião, Oliver. Aos amigos da equipe paiol 101, Felipe e Eduardo. Aos queridos Doutor Binha e Dona Cristina, meus futuros patrões.

Aos amigos das Ciências Mecânicas, Dalmo, Marcus, Túlio. Agradeço especialmente aos amigos do Vortex: ao Bráulio pelo apoio essencial no que se refere a computadores, programação, Linux e 9gag; à Camila e ao Nuno, pelo convívio e pela ajuda que me deram.

Agradeço à Universidade de Brasília e a todos os professores com quem tive aula, de um modo geral, e particularmente aos professores Jorge Almeida, José Luiz, Roberto Bobenrieth e Yuri Dumaresq.

Agradeço ao grande Doutor Gabler pelas discussões sobre fluidos magnéticos e por ter me passado grande parte do que eu sei sobre simulação de partículas. Ao professor Gustavo Abade também agradeço fortemente pela orientação na parte numérica deste trabalho, sem a qual o rendimento deste projeto seria muito menor.

Por fim, agradeço ao amigo, orientador e professor Francisco Ricardo Cunha com quem tenho trabalhado e convivido nos últimos 4 anos. Com certeza todo o amadurecimento acadêmico, e profissional, que eu tive está intimamente ligado a esse projeto. Agradeço pela dedicação na minha orientação.

*Seis cordas pra guitarra*

*Seis sentidos na mesma direção*

*Seiscentos anos de estudo*

*Ou seis segundos de atenção*

Pra entender - Engenheiros do Hawaii

*Viu a própria Torre nas dobras em chamas da rosa, e por um momento compreendeu seu propósito: que distribuía suas linhas de força a todos os mundos que existiam e mantinha-os coesos na grande hélice do tempo. Para cada tijolo que caía no chão e não na cabeça de um menino, para cada furacão que não atingia o campo de motoristas com trailers, para cada míssil que não decolava, para cada mão afastada da violência, havia a Torre.*

Lobos de Calla, A Torre Negra - Stephen King

*O cientista não estuda a natureza porque isto é útil; ele a estuda porque se deleita com isso, e se deleita com isso porque ela é bela. Se a natureza não fosse bela, não valeria a pena conhecê-la, e se a natureza não merecesse ser conhecida, a vida não valeria a pena ser vivida.*

Jules Henri Poincaré

# RESUMO

## ANÁLISE NUMÉRICA E EXPERIMENTAL DA REOLOGIA E MICROESTRUTURA DE SUSPENSÕES MAGNÉTICAS

**Autor: Adriano Possebon Rosa**

**Orientador: Prof. Francisco Ricardo Cunha**

**Programa de Pós-graduação em Ciências Mecânicas**

**Brasília, Junho de 2014**

Neste trabalho é investigado o comportamento de suspensões magnéticas do ponto de vista microscópico e macroscópico. Experimentalmente é utilizado um reômetro de placas paralelas com um dispositivo capaz de gerar campos magnéticos de até  $1\text{ Tesla}$  na direção perpendicular à vorticidade. Duas suspensões magnéticas diluídas são estudadas: uma suspensão de magnetita em óleo mineral e uma suspensão de maghemita em óleo naftênico. A viscosidade da suspensão de magnetita é analisada em função da fração volumétrica e da taxa de cisalhamento na ausência e na presença de campo magnético. Com base nos dados experimentais são propostas correlações para a viscosidade da suspensão de magnetita. Em seguida a viscosidade é analisada em função do campo magnético para diferentes taxas de cisalhamento. Em adição, é realizada uma análise em microscópio ótico das mudanças microestruturais da suspensão magnética. A viscosidade da suspensão de maghemita é investigada em função da taxa de cisalhamento e do campo magnético aplicado.

Na parte numérica são simuladas suspensões de partículas magnéticas em um fluido base newtoniano em regimes brownianos e não-brownianos. As partículas, dipolares e perfeitamente esféricas, interagem magneticamente entre si e com o campo externo aplicado. Primeiramente, são utilizados os métodos de Monte Carlo e Dinâmica de Langevin para examinar em que condições o uso de fronteiras periódicas de interação magnética de partículas faz-se necessário. Para este fim, é investigado o comportamento da magnetização de equilíbrio para diferentes frações volumétricas e intensidades de interação magnética partícula-partícula. Em seguida é feito um estudo utilizando Dinâmica de Langevin com somas de Ewald em espaços periódicos da magnetização na presença de cisalhamento simples, sendo explorado o efeito da hidrodinâmica no alinhamento médio dos dipolos. Por fim é analisada a viscosidade rotacional em função da fração volumétrica, do campo magnético e da taxa de

cisalhamento. Uma análise das estruturas formadas nas simulações numéricas é feita para explicar o comportamento da viscosidade rotacional em uma suspensão magnética. Os resultados numéricos foram comparados com soluções analíticas assintóticas nas mesmas condições de parâmetros físicos mostrando excelente concordância. Mesmo considerando a significativa diferença no tamanho das estruturas de partículas formadas, a comparação dos resultados das simulações numéricas com os dados experimentais de viscosidade mostrou-se qualitativamente consistente.

# ABSTRACT

## NUMERICAL AND EXPERIMENTAL ANALYSIS OF THE RHEOLOGY AND MICROSTRUCTURE OF MAGNETIC SUSPENSIONS

**Author: Adriano Possebon Rosa**

**Supervisor: Prof. Francisco Ricardo Cunha**

**Graduate Program in Mechanical Sciences**

**Brasilia, June 2014**

Micro and macroscopical behavior of magnetic suspensions is investigated in this work. In the experimental section, a rheometer of parallel disks with a magnetic cell is used. The magnetic cell can generate a magnetic flux density varying between 0 and 1 *Tesla* in the perpendicular direction of the vorticity. Two magnetic suspensions are investigated: magnetite particles dispersed in mineral oil and maghemite particles in naftenic oil. The magnetite suspension viscosity is analyzed as a function of the particle volume fraction and shear rate with and without applied magnetic field. Correlations for the magnetite suspension viscosity are proposed based on experimental data. Viscosity dependence concerning magnetic field is investigated for different shear rates. Microstructure changes in the suspension caused by magnetic field is analyzed with an optic microscope. Maghemite suspension viscosity behavior is investigated as a function of the shear rate and the applied magnetic field.

In the numerical section, magnetic suspensions of particles dispersed in a newtonian fluid are simulated in Brownian and non-Brownian conditions. Dipolar and spherically particles interact with each other and with an applied magnetic field. Firstly, the methods of Monte Carlo and Langevin Dynamics are used to determine which situations require the periodic boundary condition use to the correct convergence of the equilibrium magnetization. Secondly, the hydrodynamic forces influence in the magnetization is investigated with Langevin Dynamics and Ewald summation. Finally, the rotational viscosity dependence with particle volume fraction, magnetic field and shear rate is studied. The rotational viscosity behavior is explained with particles structures analysis in the simulations. Numerical results are compared with analytical solutions and an excellent agreement is achieved. Numerical and experimental results comparison show qualitatively consistence, even considering the great differences in the particles structures size.

# SUMÁRIO

<b>1</b>	<b>INTRODUÇÃO</b> .....	<b>1</b>
1.1	FLUIDOS MAGNÉTICOS .....	1
1.2	REVISÃO BIBLIOGRÁFICA .....	3
1.3	OBJETIVOS.....	6
1.3.1	OBJETIVOS GERAIS .....	6
1.3.2	OBJETIVOS ESPECÍFICOS.....	6
<b>2</b>	<b>FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA</b> .....	<b>8</b>
2.1	ELETROMAGNETISMO .....	8
2.1.1	DEFINIÇÕES.....	8
2.1.2	LEI DE COULOMB PARA O MAGNETISMO .....	9
2.1.3	VETORES MOMENTO DE DIPOLO E MAGNETIZAÇÃO .....	10
2.1.4	AS EQUAÇÕES DE MAXWELL.....	12
2.1.5	LIMITE MAGNETOSTÁTICO.....	15
2.1.6	FORÇAS E TORQUES MAGNÉTICOS.....	15
2.1.7	INTERAÇÃO DIPOLAR .....	18
2.2	EQUAÇÕES DE BALANÇO DA MECÂNICA DOS MEIOS CON- TÍNUOS .....	20
2.2.1	EQUAÇÃO DO BALANÇO DE MASSAS.....	20
2.2.2	EQUAÇÃO DO BALANÇO DE FORÇAS.....	21
2.2.3	EQUAÇÃO DO BALANÇO DE TORQUES.....	22
2.3	MOVIMENTO BROWNIANO .....	25
2.4	FORMALISMO CONSTITUTIVO .....	27
2.4.1	HIDRODINÂMICA .....	28
2.4.2	MAGNETISMO: O TENSOR DE MAXWELL .....	29
2.4.3	PRESENÇA DE TORQUE INTERNO .....	31
2.4.4	VISCOSIDADE ROTACIONAL .....	33
2.5	RELAXAÇÃO MAGNÉTICA .....	35
2.6	PARÂMETROS ADIMENSIONAIS .....	36

<b>3</b>	<b>MODELOS ANALÍTICOS DE MAGNETIZAÇÃO</b> .....	<b>39</b>
3.1	MAGNETIZAÇÃO DE EQUILÍBRIO .....	39
3.2	EQUAÇÃO EVOLUTIVA .....	44
<b>4</b>	<b>EXPERIMENTO</b> .....	<b>47</b>
4.1	ESCOAMENTO ENTRE PLACAS PARALELAS .....	47
4.2	APARATO EXPERIMENTAL .....	50
4.3	METODOLOGIA .....	54
<b>5</b>	<b>RESULTADOS EXPERIMENTAIS</b> .....	<b>58</b>
5.1	SUSPENSÃO DE MAGNETITA EM ÓLEO MINERAL .....	58
5.1.1	REOLOGIA .....	58
5.1.2	ANÁLISE MICROESTRUTURAL .....	72
5.2	FCNS5AO .....	78
<b>6</b>	<b>SIMULAÇÃO NUMÉRICA DE SUSPENSÕES MAGNÉTICAS SOB A AÇÃO DE CAMPO E CISALHAMENTO</b> .....	<b>82</b>
6.1	INTRODUÇÃO .....	82
6.2	MONTE CARLO .....	83
6.2.1	MÉTODO DA MÍNIMA IMAGEM .....	84
6.2.2	SOMAS DE EWALD EM ESPAÇOS PERIÓDICOS .....	86
6.3	DINÂMICA DE LANGEVIN .....	92
6.3.1	ADIMENSIONALIZAÇÃO .....	94
6.3.2	MÉTODO DA MÍNIMA IMAGEM NA PRESENÇA DE ESCOAMENTO .....	95
6.3.3	SOMAS DE EWALD EM ESPAÇOS PERIÓDICOS .....	96
6.4	GERAÇÃO DA CONDIÇÃO INICIAL .....	98
6.5	FUNÇÃO DE DISTRIBUIÇÃO RADIAL .....	99
<b>7</b>	<b>RESULTADOS NUMÉRICOS</b> .....	<b>102</b>
7.1	TESTES PRELIMINARES .....	102
7.2	MAGNETIZAÇÃO DE EQUILÍBRIO .....	109
7.3	MAGNETIZAÇÃO EM CISALHAMENTO .....	118
7.4	VISCOSIDADE ROTACIONAL .....	122
<b>8</b>	<b>CONSIDERAÇÕES FINAIS</b> .....	<b>133</b>
8.1	CONCLUSÕES .....	133
8.2	SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS .....	137
	<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS</b> .....	<b>139</b>

ANEXOS .....	146
I FUNÇÃO DE CORRELAÇÃO COM SIMETRIA AXIAL .....	147

# LISTA DE FIGURAS

1.1	Esquema de um grupo de partículas magnéticas com suas respectivas camadas de surfactantes, que evitam a formação de agregados e a precipitação da suspensão. Retirado de [1].	2
2.1	Representação de um volume contínuo de uma suspensão coloidal magnética. Os momentos das partículas estão aleatoriamente orientados. $\mathbf{x}$ está fixo e representa um ponto na descrição contínua enquanto $\mathbf{y}$ percorre o interior do volume indicando onde há partícula.	11
2.2	Esquema de um gradiente de campo magnético atuando em um pequeno elemento de uma substância magnética polarizada [2].	16
2.3	Esquema para calcular o campo magnético em um ponto $P$ devido a presença de um dipolo.	17
2.4	Esquema de cisalhamento simples com campo magnético transversal.	34
3.1	Magnetização em função de $\alpha$ com $\phi = 0,05$ para diferentes valores de $\lambda$ usando o modelo de Ivanov-Kuznetsova [3], de acordo com a equação (3.8).	41
3.2	Diferença entre a magnetização de Ivanov-Kuznetsova [3] e a de Langevin [2] para diferentes $\lambda$ em função de $\alpha$ com $\phi = 0,05$ .	42
3.3	Magnetização em função da fração volumétrica $\phi$ com $\alpha = 1$ para diferentes valores de $\lambda$ usando o modelo de Ivanov-Kuznetsova [3], de acordo com a equação (3.8).	43
3.4	Magnetização em função da fração volumétrica $\phi$ com $\alpha = 10$ para diferentes valores de $\lambda$ usando o modelo de Ivanov-Kuznetsova [3], de acordo com a equação (3.8).	43
4.1	Esquema de funcionamento do reômetro de placas paralelas. O disco de raio $R$ gira sobre a placa. O fluido reside no espaçamento de comprimento $\delta$ entre o disco e a placa. A direção $\theta$ é perpendicular à página.	48
4.2	Reômetro MCR 301 da marca Anton Paar, que funciona baseado no princípio de escoamento entre disco rotativo e placa plana. (Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia - ENM - UnB)	51

4.3	Filtros responsáveis pelo tratamento do ar que sai do compressor e se desloca até o reômetro MRC 301. (Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia - ENM - UnB) .....	52
4.4	Equipamento responsável pelo controle da temperatura do fluido em estudo. (Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia - ENM - UnB) .....	52
4.5	Célula magnética instalada no reômetro. (a) Disco rotativo. (b) Cápsula de blindagem desmontada. (c) Bobina do aparato magnetoreológico. (d) Fonte de corrente. (Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia - ENM - UnB) ..	53
4.6	Microscópio ótico e câmera digital. (Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia - ENM - UnB) .....	53
4.7	Viscosidade do óleo mineral em função do número de realizações, mostrando a convergência da média. A linha tracejada representa a viscosidade média obtida após 5 medidas (147,69 cP). .....	55
4.8	Viscosidade do óleo mineral em função da taxa de cisalhamento. Nota-se o comportamento newtoniano deste óleo. As linhas tracejadas representam uma tolerância de $\pm 1\%$ em relação ao valor médio. ....	55
4.9	Estudo do efeito do aumento da temperatura devido a corrente elétrica no comportamento reológico do óleo mineral puro. O encarte mostra o detalhe para os 100 primeiros segundos de teste. ....	56
4.10	Viscosidade em função do tempo para $\phi = 0,005$ , $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ e $\alpha = 0$ . O gráfico principal mostra os dados obtidos a partir de 4 realizações experimentais. No encarte os pontos representam a média obtida em cada tempo, com seus respectivos desvios padrão, e a linha cheia representa a média final obtida. ....	57
5.1	Viscosidade em função da concentração volumétrica $\phi$ para diferentes campos aplicados com uma taxa de cisalhamento constante $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ . Na figura: ■ $\alpha = 0$ , ● $\alpha = 1,45$ , ► $\alpha = 2,61$ e ◄ $\alpha = 4,51$ . ....	60
5.2	Contribuição não-linear para a viscosidade total em função da fração volumétrica com taxa de cisalhamento constante $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ . Na figura: ■ $\alpha = 1,45$ , ● $\alpha = 2,61$ e ► $\alpha = 4,51$ . ....	61
5.3	Viscosidade em função da fração volumétrica de partículas $\phi$ sem campo externo aplicado e com uma taxa de cisalhamento constante $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ . A linha cheia representa o ajuste linear dado pela equação (5.6). ....	62
5.4	Viscosidade em função da concentração volumétrica $\phi$ com $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ e $\alpha = 1,45$ . A linha cheia representa o ajuste $O(\phi)$ da equação (5.7), a linha tracejada $O(\phi^2)$ e a pontilhada $O(\phi^3)$ . Neste caso: $C_1 = 87$ e $C_2 = 45$ . O encarte mostra o detalhe da parte linear. ....	63

5.5	Viscosidade em função da concentração volumétrica $\phi$ com $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ e $\alpha = 2,61$ . A linha cheia representa o ajuste $O(\phi)$ da equação (5.7), a linha tracejada $O(\phi^2)$ e a pontilhada $O(\phi^3)$ . Neste caso: $C_1 = 87$ e $C_2 = 60$ . O encarte mostra o detalhe da parte linear. ....	63
5.6	Viscosidade em função da concentração volumétrica $\phi$ com $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ e $\alpha = 4,51$ . A linha cheia representa o ajuste $O(\phi)$ da equação (5.7), a linha tracejada $O(\phi^2)$ e a pontilhada $O(\phi^3)$ . Neste caso: $C_1 = 87$ e $C_2 = 90$ . O encarte mostra o detalhe da parte linear. ....	64
5.7	Viscosidade em função da concentração volumétrica $\phi$ com $\dot{\gamma} = 500 s^{-1}$ . Na figura: $\blacksquare \alpha = 0$ , $\bullet \alpha = 1,45$ , $\blacktriangleright \alpha = 2,61$ e $\blacktriangleleft \alpha = 4,51$ . ....	65
5.8	Contribuição não-linear para a viscosidade total em função da fração volumétrica com taxa de cisalhamento constante $\dot{\gamma} = 500 s^{-1}$ . Na figura: $\blacksquare \alpha = 1,45$ , $\bullet \alpha = 2,61$ e $\blacktriangleright \alpha = 4,51$ . ....	65
5.9	Viscosidade em função da concentração volumétrica $\phi$ com $\dot{\gamma} = 1000 s^{-1}$ . Na figura: $\blacksquare \alpha = 0$ , $\bullet \alpha = 1,45$ , $\blacktriangleright \alpha = 2,61$ e $\blacktriangleleft \alpha = 4,51$ . ....	66
5.10	Contribuição não-linear para a viscosidade total em função da fração volumétrica com taxa de cisalhamento constante $\dot{\gamma} = 1000 s^{-1}$ . Na figura: $\blacksquare \alpha = 1,45$ , $\bullet \alpha = 2,61$ e $\blacktriangleright \alpha = 4,51$ . ....	66
5.11	Viscosidade em função do campo adimensional $\alpha$ para diferentes concentrações volumétricas de magnetita e com taxa de cisalhamento constante $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ . Na figura: $\blacksquare \phi = 0,001$ (no encarte) , $\bullet \phi = 0,005$ e $\blacktriangleright \phi = 0,01$ . ....	67
5.12	Viscosidade em função do campo adimensional $\alpha$ para $\phi = 0,001$ e com taxa de cisalhamento constante $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ . A linha cheia representa uma aproximação de $\Delta\eta_s$ dado pela equação (5.5) com $k_2 = 165$ . ....	68
5.13	Viscosidade em função da taxa de cisalhamento $\dot{\gamma}$ para $\phi = 0,001$ . As barras de erro, com um tamanho máximo de 5%, foram omitidas para facilitar a visualização e $\dot{\gamma}_{max} = 2000 s^{-1}$ representa a taxa de cisalhamento máxima utilizada. Na figura: $\bullet \alpha = 0$ , $\square \alpha = 4,51$ e a linha cheia representa um ajuste com a equação (5.8), com $k = 0,01$ e $n = 0,25$ . ....	69
5.14	Viscosidade em função da taxa de cisalhamento $\dot{\gamma}$ para $\phi = 0,005$ . As barras de erro, com um tamanho máximo de 5%, foram omitidas para facilitar a visualização e $\dot{\gamma}_{max} = 2000 s^{-1}$ representa a taxa de cisalhamento máxima utilizada. Na figura: $\bullet \alpha = 0$ , $\square \alpha = 4,51$ e a linha cheia representa um ajuste com a equação (5.8), com $k = 0,1$ e $n = 0,4$ . ....	69

5.15	Viscosidade em função da taxa de cisalhamento $\dot{\gamma}$ para $\phi = 0,01$ e $\dot{\gamma}_{max} = 2000 s^{-1}$ representa a taxa de cisalhamento máxima utilizada. Na figura: ● $\alpha = 0$ , □ $\alpha = 4,51$ e a linha cheia representa um ajuste com a equação (5.8), com $k = 0,25$ e $n = 0,35$ .....	70
5.16	Viscosidade em função da taxa de cisalhamento $\dot{\gamma}$ para $\alpha = 1,45$ e $\dot{\gamma}_{max} = 2000 s^{-1}$ representa a taxa de cisalhamento máxima utilizada. Na figura: ● $\phi = 0,001$ , □ $\phi = 0,005$ e ► $\phi = 0,01$ .....	70
5.17	Imagem da estrutura da suspensão com $\phi = 0,1\%$ sem a presença de campo magnético. ....	72
5.18	Imagem da estrutura da suspensão com $\phi = 0,1\%$ com a presença de campo magnético. ....	73
5.19	Imagem da estrutura da suspensão com $\phi = 0,5\%$ sem a presença de campo magnético. Distribuição de estruturas mais homogênea e isotrópica. ....	73
5.20	Imagem da estrutura da suspensão com $\phi = 0,5\%$ com a presença de campo magnético. Presença de cadeias anisotrópicas induzidas pela presença do campo.....	73
5.21	Imagem da estrutura da suspensão com $\phi = 1,0\%$ sem a presença de campo magnético. ....	74
5.22	Imagem da estrutura da suspensão com $\phi = 1,0\%$ com a presença de campo magnético. Verifica-se uma estrutura dominada pela formação de longas cadeias anisotrópicas caracterizando efeitos fortemente não-lineares na suspensão magnética levando a um aumento pronunciado da viscosidade.....	74
5.23	Viscosidade em função da concentração volumétrica $\phi$ para diferentes campos aplicados com uma taxa de cisalhamento constante $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ . As imagens representam as estruturas do fluido magnético com e sem campo aplicado, mostrando o efeito da orientação e da formação de agregados no comportamento reológico do fluido. Na figura: ● $\alpha = 0$ , ■ $\alpha = 1,45$ , ► $\alpha = 2,61$ e ◀ $\alpha = 4,51$ . ....	75
5.24	Tamanho das estruturas principais na ausência e na presença de campo externo para $\phi = 0,1\%$ . ....	76
5.25	Tamanho das estruturas principais na ausência e na presença de campo externo para $\phi = 0,5\%$ . ....	77
5.26	Tamanho das estruturas principais na ausência e na presença de campo externo para $\phi = 1,0\%$ . Comparação com a distribuição normal. ....	77
5.27	Viscosidade do FCNS5AO em função do tempo com $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ e $\alpha = 0$ . Cada ponto representa a média de 5 realizações naquele tempo. A linha pontilhada representa a média final obtida. ....	78

5.28	Viscosidade do FCNS5AO em função do campo magnético aplicado para diferentes taxas de cisalhamento. Na figura: ● $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$ , ► $\dot{\gamma} = 300 \text{ s}^{-1}$ , ◄ $\dot{\gamma} = 500 \text{ s}^{-1}$ e ■ $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$ .	79
5.29	Viscosidade do FCNS5AO em função do campo magnético aplicado para $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$ . A linha cheia representa uma comparação com o modelo de Shliomis dado pela equação (5.5), com $k_2 = 10$ .	80
5.30	Viscosidade do FCNS5AO em função da taxa de cisalhamento $\dot{\gamma}$ sem a presença de campo magnético.	81
5.31	Viscosidade do FCNS5AO em função da taxa de cisalhamento $\dot{\gamma}$ com $\alpha = 4, 51$ . A linha cheia representa um ajuste com a equação (5.8), com $k = 0,045$ e $n = 0,5$ .	81
6.1	Esquema do método da Mínima Imagem, mostrando a célula central e as suas imagens.	85
6.2	Esquema mostrando a periodicidade do sistema para utilização das somas de Ewald (adaptado de [4]).	87
6.3	Esquema de distribuição de cargas no método das somas de Ewald. Em (a) é mostrado o somatório no espaço real, com as cargas pontuais originais e as distribuições com cargas opostas. Em (b) é mostrado o esquema do somatório no espaço inverso, em que as distribuições possuem carga de mesmo sinal que as cargas originais.	88
6.4	Esquema da convenção da Mínima Imagem, mostrando a célula central e as suas imagens, quando há cisalhamento.	96
7.1	Magnetização adimensional média da suspensão magnética em função do número de partículas $N$ para $\alpha = 1$ , $\lambda = 4$ e $\phi = 0,15$ usando PMC. Os valores de $N$ são: 16, 32, 64, 128, 256, 512 e 1024. O valor encontrado para $N = 256$ foi de $0,635 \pm 0,019$ e para $N = 1024$ foi de $0,629 \pm 0,016$ . A linha tracejada vertical passa pelo ponto correspondente a $N = 256$ .	104
7.2	Desvio padrão da magnetização adimensional da suspensão magnética em função do número de partículas $N$ para $\alpha = 1$ , $\lambda = 4$ e $\phi = 0,15$ usando PMC. Os valores de $N$ são: 16, 32, 64, 128, 256, 512 e 1024.	105
7.3	Configuração de partículas e respectivos dipolos na célula principal da simulação para $\alpha = 1$ , $\lambda = 4$ e $\phi = 0,15$ com $N = 256$ usando PMC. As setas indicam a direção do vetor momento de dipolo que é fixo no centro de cada partícula. O campo magnético é aplicado na direção $y$ .	105

7.4	Magnetização adimensional em função do número de passos usando PMC para $\alpha = 1$ , $\lambda = 2$ , $\phi = 0,1$ e $N = 256$ . A média é 0,44. No encarte é mostrada a magnetização no início da simulação. ....	106
7.5	Média temporal para o mesmo caso da figura (7.5), mostrando como é calculado o valor final da magnetização e o desvio padrão associado. A linha cheia representa a média final, que foi de 0,44. O desvio padrão foi de 0,03 neste caso. ....	107
7.6	Magnetização adimensional em função do número de passos usando PMC com $\alpha = 1$ , $\lambda = 2$ , $\phi = 0,1$ e $N = 256$ . A linha preta representa uma suspensão com partículas cuja orientação inicial é aleatória. A linha vermelha representa uma suspensão com orientação inicial dos momentos de dipolo das partículas coincidentes com o campo magnético. ....	108
7.7	Magnetização em função do número de passos usando PLD com $\alpha = 1$ , $\lambda = 2$ , $Pe = 5$ , $\phi = 0,1$ e $N = 256$ . A média é de 0,32. No encarte é mostrada a magnetização no início da simulação. ....	109
7.8	Magnetização adimensional em função de $\alpha$ com $\phi = 0,15$ e $\lambda = 2$ . Na figura: $\circ$ MC, $\square$ LD, $\triangleright$ PMC e $\blacktriangleleft$ PLD. A linha cheia representa a função de Langevin dada por (3.1) e a tracejada o modelo de Ivanov-Kuznetsova, dado pela equação (3.4). ....	110
7.9	Magnetização adimensional em função da fração volumétrica $\phi$ com $\alpha = 1$ e $\lambda = 1$ . As linhas representam o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos numéricos. Na figura: $\bullet$ PMC, $\blacksquare$ PLD, $\blacktriangleright$ MC e $\blacktriangleleft$ LD. ....	111
7.10	Magnetização adimensional em função da concentração volumétrica $\phi$ com $\alpha = 1$ e $\lambda = 2$ . As linhas representam o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos numéricos. Na figura: $\bullet$ PMC, $\blacksquare$ PLD, $\blacktriangleright$ MC e $\blacktriangleleft$ LD. ....	112
7.11	Magnetização em função da concentração volumétrica $\phi$ com $\alpha = 1$ e $\lambda = 1$ . As linhas representam o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos numéricos. Na figura: $\bullet$ PMC, $\blacksquare$ PLD, $\blacktriangleright$ MC e $\blacktriangleleft$ LD. Detalhe para baixas concentrações. ....	113
7.12	Magnetização em função da concentração volumétrica $\phi$ com $\alpha = 1$ e $\lambda = 2$ . As linhas representam o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos numéricos. Na figura: $\bullet$ PMC, $\blacksquare$ PLD, $\blacktriangleright$ MC e $\blacktriangleleft$ LD. Detalhe para baixas concentrações. ....	114

7.13	Magnetização em função de $\lambda$ com $\alpha = 1$ e $\phi = 0.05$ . A linha tracejada representa a função de Langevin, a cheia o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos. Na figura: ● PMC, ■ PLD, ► MC e ◄ LD. ....	116
7.14	Magnetização em função de $\lambda$ com $\alpha = 1$ e $\phi = 0.15$ . A linha tracejada representa a função de Langevin, a cheia o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos numéricos. Na figura: ● PMC, ■ PLD, ► MC e ◄ LD. ....	116
7.15	Função $g_o(r)$ usando PMC para $\alpha = 0$ e diferentes combinações de $\lambda$ e $\phi$ . ....	117
7.16	Funções $g_o(r)$ e $g_2(r)$ usando PMC para $\alpha = 1$ , $\lambda = 2$ e $\phi = 0, 10$ . ....	117
7.17	Magnetização adimensional em função de $\alpha$ com $\phi = 0,03$ e $Pe = 10$ (símbolos preenchidos) e $Pe = 30$ (símbolos abertos) usando PLD. A linha cheia representa a função de Langevin. Na figura: ● $\lambda = 0$ e ■ $\lambda = 4$ . ....	118
7.18	Magnetização adimensional em função de $Pe$ para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,15$ e $\lambda = 0$ ● e $\lambda = 4$ ■ usando PLD. ....	119
7.19	Magnetização adimensional em função de $Pe$ para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,05$ e $\lambda = 0$ ● e $\lambda = 4$ ■ usando PLD. ....	120
7.20	Magnetização adimensional em função de $\lambda$ para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,05$ e $Pe = 3$ usando PLD. ....	121
7.21	Magnetização adimensional em função de $\lambda$ para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,05$ e $Pe = 30$ usando PLD. ....	121
7.22	Viscosidade rotacional adimensional em função da fração volumétrica $\phi$ com $Pe = 5$ e $\alpha = 1$ para diferentes $\lambda$ , com 256 partículas, usando Dinâmica de Langevin com Somas de Ewald. Na figura: ● $\lambda = 0$ , ■ $\lambda = 1$ e ► $\lambda = 2$ . A linha cheia representa a equação de Martsenyuk [5]. ....	123
7.23	Viscosidade rotacional adimensional em função da fração volumétrica $\phi$ com $Pe = 5$ e $\alpha = 2$ para diferentes $\lambda$ usando PLD. Na figura: ● $\lambda = 0$ , ■ $\lambda = 1$ e ► $\lambda = 2$ . A linha cheia representa a equação de Martsenyuk. ....	123
7.24	Viscosidade rotacional adimensional em função de $\alpha$ para $\phi = 0,03$ e $Pe = 10$ usando PLD. A linha cheia representa a viscosidade rotacional dada pelo modelo de Martsenyuk. Na figura: ● $\lambda = 0$ , ■ $\lambda = 2$ e ► $\lambda = 4$ . ....	124
7.25	Viscosidade rotacional adimensional em função de $Pe$ com $\alpha = 5$ e $\phi = 0,05$ para diferentes $\lambda$ usando PLD. A linha cheia representa o valor previsto pela lei de Martsenyuk. Os desvios padrão não foram colocados em todos os pontos para facilitar a visualização. Na figura: ● $\lambda = 0$ e ■ $\lambda = 3$ ....	125

7.26	Viscosidade rotacional adimensional em função de $Pe$ com $\alpha = 5$ e $\phi = 0,15$ para diferentes $\lambda$ , com 256 partículas, usando Dinâmica de Langevin com Somas de Ewald. A linha cheia representa o valor predito pela lei de Martsenyuk. Na figura: ● $\lambda = 0$ e ■ $\lambda = 4$ .....	126
7.27	Viscosidade rotacional adimensional em função de $\lambda$ com $\alpha = 5$ e $\phi = 0,05$ para diferentes $Pe$ usando PLD. Na figura: ● $Pe = 3$ e ■ $Pe = 30$ .....	126
7.28	Seção transversal da estrutura final da simulação para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,05$ , $\lambda = 0$ e $Pe = 3$ , referente ao gráfico da figura (7.25). O escoamento é na direção $x$ e o campo magnético está orientado na direção $y$ . ....	128
7.29	Seção transversal da estrutura final da simulação para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,05$ , $\lambda = 4$ e $Pe = 3$ , referente ao gráfico da figura (7.25). O escoamento é na direção $x$ e o campo magnético está orientado na direção $y$ . ....	128
7.30	Seção transversal da estrutura final da simulação para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,05$ , $\lambda = 0$ e $Pe = 30$ , referente ao gráfico da figura (7.25). O escoamento é na direção $x$ e o campo magnético está orientado na direção $y$ . ....	129
7.31	Seção transversal da estrutura final da simulação para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,05$ , $\lambda = 4$ e $Pe = 30$ , referente ao gráfico da figura (7.25). O escoamento é na direção $x$ e o campo magnético está orientado na direção $y$ . ....	129
7.32	Seção transversal da estrutura final da simulação para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,15$ , $\lambda = 0$ e $Pe = 3$ , referente ao gráfico da figura (7.26). O escoamento é na direção $x$ e o campo magnético está orientado na direção $y$ . ....	130
7.33	Seção transversal da estrutura final da simulação para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,15$ , $\lambda = 4$ e $Pe = 3$ , referente ao gráfico da figura (7.26). O escoamento é na direção $x$ e o campo magnético está orientado na direção $y$ . ....	131
7.34	Seção transversal da estrutura final da simulação para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,15$ , $\lambda = 0$ e $Pe = 30$ , referente ao gráfico da figura (7.26). O escoamento é na direção $x$ e o campo magnético está orientado na direção $y$ . ....	131
7.35	Seção transversal da estrutura final da simulação para $\alpha = 5$ , $\phi = 0,15$ , $\lambda = 4$ e $Pe = 30$ , referente ao gráfico da figura (7.26). O escoamento é na direção $x$ e o campo magnético está orientado na direção $y$ . ....	132

# LISTA DE TABELAS

2.1	Parâmetros Adimensionais .....	38
7.1	Magnetização $M/M_d$ em função da concentração volumétrica $\phi$ para $\lambda = 1$ . Dados da figura (7.11). .....	113
7.2	Magnetização $M/M_d$ em função da concentração volumétrica $\phi$ para $\lambda = 2$ . Dados da figura (7.12). .....	114

# LISTA DE SÍMBOLOS

## Símbolos Latinos

$b$	Forças de campo
$B$	Vetor indução magnética
$d$	Vetor na direção do momento de dipolo
$D$	Tensor taxa de deformação
$D_0^t$	Coefficiente de difusão browniano
$E$	Vetor campo elétrico
$f$	Vetor de tensões
$F$	Força
$g$	Função de distribuição radial
$g$	Aceleração gravitacional
$\hat{h}$	Vetor unitário na direção do campo magnético
$H$	Vetor campo magnética
$I$	Tensor identidade
$J$	Momento de inércia da partícula
$k$	Constante de Boltzmann
$k$	Vetor de <i>lattice</i> do espaço recíproco
$K_m$	Permeabilidade relativa
$L$	Momento angular total
$m$	Vetor momento de dipolo
$M_L$	Magnetização de Langevin
$M_s$	Magnetização de saturação
$M_d$	Magnetização do sólido
$M$	Vetor magnetização
$n$	Fração de partículas
$n$	Vetor de <i>lattice</i> do espaço real
$N$	Número de partículas
$p$	Pressão hidrodinâmica

$P$	Pressão mecânica
$p_s$	Intensidade do pólo magnético
$p_m$	Pressão magnética
$q$	Carga
$\mathbf{r}$	Vetor posição relativa
$S$	Fator de estrutura
$t$	Tempo
$t_T$	Número de passos da simulação
$T$	Temperatura
$\mathbf{T}$	Vetor torque magnético
$\mathbf{u}$	Campo de velocidade euleriano
$U_i$	Energia potencial da partícula $i$
$\mathbf{v}$	Velocidade da carga
$v_p$	Volume de uma partícula magnética
$V$	Volume
$V_p$	Volume total de partículas magnéticas

## Símbolos Gregos

$\dot{\gamma}$	Taxa de cisalhamento
$\Gamma^N$	Tensor de tensões newtoniano
$\Gamma^{NN}$	Tensor de tensões não-newtoniano
$\epsilon_0$	Constante de permissividade do vácuo
$\eta$	Viscosidade dinâmica
$\eta_0$	Viscosidade do fluido base
$\eta'$	Viscosidade angular
$\eta_r$	Viscosidade rotacional
$\sigma$	Diâmetro da partícula
$\mu_0$	Permeabilidade magnética do vácuo
$\mu$	Permeabilidade magnética do fluido
$\rho$	Massa específica
$\rho_q$	Densidade de carga
$\rho_s$	Densidade de pólos magnéticos
$\Sigma$	Tensor de tensões
$\Sigma_e$	Tensão mínima de escoamento
$\tau_B$	Tempo de relaxação browniana
$\tau_c$	Tempo característico do escoamento
$\tau_{est}$	Tempo de relaxação da estrutura
$\tau_N$	Tempo de relaxação magnética de Néel
$\phi$	Fração volumétrica de partículas
$\chi$	Susceptibilidade do fluido
$\omega$	Velocidade angular
$\Omega$	Vorticidade

## Grupos Adimensionais

$\alpha$	Campo magnético
$\lambda$	Intensidade da interação partícula-partícula
$Ca_m$	Capilaridade magnética
$Pe$	Número de Péclet
$Re$	Número de Reynolds
$St$	Número de Stokes

## Símbolos Matemáticos

$\nabla$	Operador gradiente
$\nabla \cdot$	Operador divergente
$\nabla \times$	Operador rotacional
$\nabla^2$	Operador laplaciano
$\partial/\partial t$	Derivada temporal
$D/Dt$	Derivada material
$\int$	Integral

## Siglas

FCNS5A0	Ferrofluido de maghemita em óleo mineral naftênico
LD	Método da Dinâmica de Langevin
MC	Método de Monte Carlo
PLD	Método da Dinâmica de Langevin com interações periódicas
PMC	Método de Monte Carlo com interações periódicas
SI	Sistema Internacional de Unidades

# Capítulo 1

## Introdução

### 1.1 FLUIDOS MAGNÉTICOS

Fluidos magnéticos são suspensões de partículas de sólidos com propriedades ferromagnéticas, geralmente magnetita ou ferrita, em líquidos newtonianos. A combinação do magnetismo e da mecânica dos fluidos é responsável pelo grande interesse despertado por esses materiais. O comportamento do fluido pode ser controlado por campos magnéticos, permitindo que sua viscosidade varie significativamente em frações de segundo [6].

Os fluidos magnéticos ou suspensões magnéticas são divididos em ferrofluidos e suspensões magneto-reológicas [7]. Basicamente a diferença está no tamanho dos aglomerados de partículas formados. Nos ferrofluidos as partículas possuem diâmetro aproximado de 10 *nm* e são envoltas por uma camada de surfactante que evita a formação de aglomerados, como mostra o esquema da figura (1.1). Forças Brownianas impedem a sedimentação, possibilitando que esses fluidos sejam estáveis e mantenham preservadas suas características físicas por longos períodos de tempo. Já as suspensões magneto-reológicas são compostas por partículas microscópicas, que sedimentam com o tempo e formam grandes estruturas na presença de campo magnético.

Cada partícula magnética pode ser considerada como um dipolo com um vetor orientação fixo na mesma. Quando o fluido está sob a influência de um campo magnético, as partículas tendem a ter os seus vetores de momento de dipolo orientados na direção do campo, criando uma anisotropia no fluido ao polarizar a fase dispersa. Isso faz com que aumente o trabalho para cisalhar a suspensão, já que um torque magnético tenta manter a partícula com o vetor momento de dipolo alinhado na direção do campo. Esse efeito, juntamente com a formação de pequenas cadeias de partículas é o responsável por um aumento na viscosidade de um ferrofluido. Já em suspensões magneto-reológicas o principal mecanismo que leva a

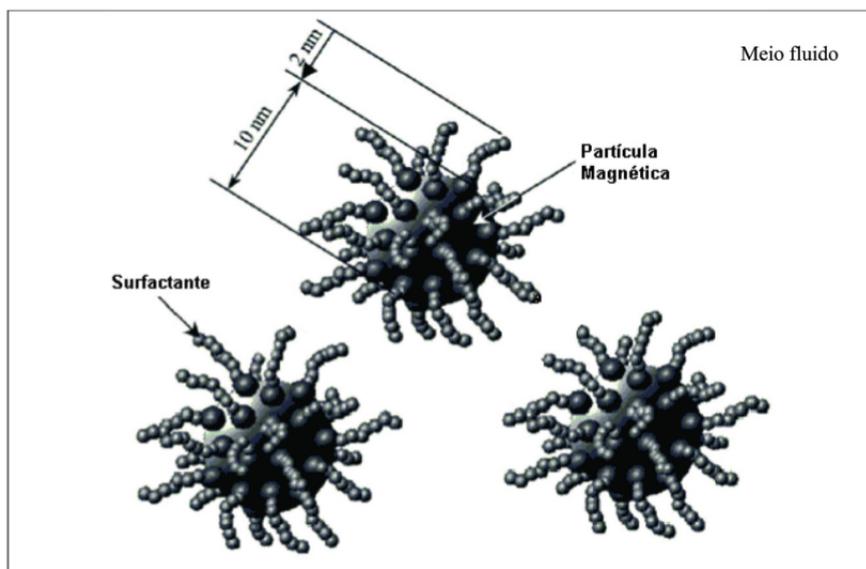


Figura 1.1: Esquema de um grupo de partículas magnéticas com suas respectivas camadas de surfactantes, que evitam a formação de agregados e a precipitação da suspensão. Retirado de [1].

um aumento na viscosidade na presença de campo é a formação de grandes estruturas, que precisam ser quebradas para cisalhar. Quando altas taxas de cisalhamento são aplicadas não é possível observar nenhum efeito significativo dessas interações entre fluido e o campo magnético, já que nesse caso as forças hidrodinâmicas são dominantes.

O estudo da mecânica do movimento de um fluido influenciado por forças magnéticas devido a polarização é denominado ferrohidrodinâmica [2]. Trata-se de um campo novo da mecânica dos fluidos, criado e desenvolvido a partir da metade do século XX. Esta disciplina está inserida no estudo da interação de campos e fluidos, que é composto também pela eletrohidrodinâmica (forças elétricas) e pela magnetohidrodinâmica (interação de forças magnéticas com fluidos condutores de eletricidade).

O desenvolvimento de fluidos estáveis fez com que surgissem diversas aplicações para o fluido magnético [8]. Na medicina, fluidos magnéticos biocompatíveis podem conduzir fármacos dentro do corpo para o local exato onde eles são necessários, com o controle de um campo externo, possibilitando que uma dosagem menor seja usada [9]. Também na medicina, fluidos magnéticos podem ser conduzidos até o local de um tumor e, sob a influência de um campo magnético externo oscilatório de alta frequência, aquecer as células cancerígenas locais, levando a uma hipertermia destas sem danificar células saudáveis [10]. Fluidos magnéticos podem ser usados para acelerar o processo de separação de água e óleo [11], além de possibilitar um aumento no resfriamento convectivo ou tornar esse mecanismo possível mesmo em ambientes com pequena aceleração gravitacional [12]. São usados

também na vedação dinâmica de discos rígidos de computadores e como amortecedores de vibração em alto-falantes [13].

## 1.2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

O estudo dos fluidos magnéticos teve início nos anos 1960, após a produção do primeiro ferrofluido estável em 1963 pela NASA por Stephen Papell (patente US 3215572). O objetivo inicial era o desenvolvimento de um combustível de motor de foguete que pudesse ser controlado em ambientes com baixa aceleração gravitacional. Vários cientistas haviam tentado durante a primeira metade do século XX a fabricação de um fluido estável, mas a atração entre as partículas gerava grandes aglomerados que sedimentavam, alterando propriedades físicas do fluido tornando-o instável e inviabilizando aplicações industriais.

O desenvolvimento de um fluido magnético estável atraiu diversos pesquisadores para essa nova área que acopla a mecânica dos fluidos e o eletromagnetismo. Kamiyama e Rosensweig [14] realizaram um estudo do número de publicações de livros, artigos e patentes entre 1960 e 1980, mostrando um grande aumento nesse número durante o período. Rosensweig [2] e Shliomis [15] realizaram experimentos pioneiros com ferrofluidos e desenvolveram a teoria básica relacionada ao estudo desses fluidos.

Ferrofluidos são sistemas bifásicos formados por uma fase líquida e uma fase sólida composta por partículas magnéticas. As partículas geralmente possuem diâmetro em torno de  $10\text{ nm}$ . O movimento browniano impede que haja sedimentação. Além disso devem ser recobertas por surfactantes que impedem a formação de aglomerados. Assim, o fluido magnético deve manter a uniformidade sob a ação de um campo magnético. Um fluido magnético típico possui até 10% de fração volumétrica de partículas, cerca de 0,2% de surfactante, sendo o ácido oléico o mais usado, e o restante do volume é composto pelo fluido base [16]. Fluidos base comumente utilizados são o óleo mineral, a parafina, o querosene e a água. Os principais métodos de preparação incluem redução de tamanho de partícula, decomposição de carbonila e outros compostos, por eletrodeposição e por evaporação de metal em líquido [17].

O principal atrativo dos fluidos magnéticos é a capacidade de variação da viscosidade em um curto espaço de tempo, sem que a fluidez do material seja comprometida. Isso ocorre devido o alinhamento dos momentos de dipolo magnético das partículas com o campo magnético, impedindo com que a partícula gire livremente. Essa viscosidade extra causada pelo alinhamento das partículas é denominada viscosidade rotacional. Além disso o movimento browniano gira as partículas e o fluido retorna ao estado original quando o campo é retirado. Os primeiros trabalhos experimentais de escoamento em tubo capilar de fluido magnético

na presença de campo [18, 19] mostram o aumento significativo da viscosidade em função do campo magnético aplicado. O campo é aplicado tanto na direção do escoamento quanto perpendicular a este e o aumento da viscosidade chega a 30% em relação à viscosidade quando não há campo. No entanto, quando o campo magnético aplicado é oscilatório e em uma frequência associada à rotação da partícula, esse campo pode ajudar a partícula girar, reduzindo o esforço do cisalhamento, o que é traduzido em uma diminuição da viscosidade. Esse efeito de “viscosidade negativa” foi observado experimentalmente por Bacri et al. [20]. Utilizando um reômetro de placas paralelas, como o deste trabalho, Odenbach et al. [21] analisam a variação da viscosidade de um ferrofluido comercial com 7,2% de fração volumétrica de partículas de magnetita. Os resultados mostram a dependência da viscosidade com a taxa de cisalhamento e com o campo magnético aplicado.

A magnetização é definida como uma média do alinhamento dos vetores momento de dipolo das partículas com a direção do campo magnético aplicado. Esta propriedade, que tem origem na microestrutura do fluido, está intimamente ligada ao comportamento macroscópico reológico do fluido. Vários trabalhos experimentais apresentam o comportamento da magnetização em função do campo [22, 23, 24, 25]. Nota-se um aumento substancial da magnetização e depois uma saturação para altos campos aplicados. Os resultados experimentais mostram ainda que a interação magnética entre as partículas favorece o aumento da magnetização para baixos campos.

Os primeiros modelos analíticos de magnetização de equilíbrio não consideravam a interação entre partículas e eram baseados na função de Langevin [2]. Ivanov e Kuznetsova [3] determinaram expressões analíticas para a magnetização de um fluido magnético considerando interações de até três partículas. Os resultados mostraram que há um aumento da magnetização quando as partículas interagem magneticamente. Outros modelos encontrados na literatura incluem o modelo de campo modificado de primeira ordem [25, 26] e o modelo de Weiss [27].

As equações fundamentais do estudo dos fluidos magnéticos são as equações do eletromagnetismo, de balanço de massa, de balanço de forças, de balanço de torques e de evolução da magnetização. Esta última acopla o magnetismo com a mecânica dos fluidos, considerando que a magnetização é afetada pelo escoamento. O modelo pioneiro de equação de evolução foi proposto por Shliomis [28], em 1972. Esse modelo contém o efeito da vorticidade do fluido, um termo relacionado à magnetização de equilíbrio e um termo relacionado ao torque magnético. No entanto esse modelo mostrou-se válido apenas para baixas taxas de cisalhamento, em que o tempo característico browniano fosse bem menor que um tempo característico do próprio escoamento. Esse problema foi solucionado logo depois com o novo modelo proposto por Martsenyuk et al. [5]. Neste modelo uma magnetização de

não-equilíbrio é considerada em equilíbrio em todo instante de tempo com um campo magnético efetivo, diferente do campo magnético aplicado. Para baixas taxas de cisalhamento os dois modelos convergem. No entanto o modelo de Shliomis não apresenta resultados físicos consistentes para altas taxas de cisalhamento.

Esses modelos de evolução da magnetização, no entanto, envolvem termos constitutivos e muitas vezes o tempo de relaxação da magnetização envolvido seria diversas ordens de grandeza menor que um tempo característico do próprio escoamento. Um modelo recente proposto por Cunha [29] é deduzido diretamente das equações fundamentais do magnetismo. Na equação evolutiva está presente um termo relacionado ao desvio da magnetização causado pelo cisalhamento que acopla essa equação à equação do balanço de forças do meio contínuo. Estão presentes ainda um termo que contabiliza a variação da magnetização causada pela deformação das partículas fluidas devido o escoamento e um termo de difusividade da magnetização.

Simulações numéricas de fluidos magnéticos constituem outra fonte importante para o entendimento do comportamento dessas suspensões. Simulações de partículas magnéticas, como as desenvolvidas neste trabalho, podem fornecer informações que são de difícil obtenção ou mesmo inacessíveis através de experimentos, como a estrutura das partículas. Leeuw et al. [30, 31, 32] e Adams [33] apresentaram no início dos anos 1980 as bases teóricas para a simulação de partículas dipolares. Como as interações são de longo alcance o somatório da energia potencial de cada partícula não converge facilmente, sendo necessárias técnicas específicas para que essa convergência seja obtida. Os trabalhos de Wang et al. [34] e de Ilg et al. [35] destacam-se na simulação de partículas. Esses trabalhos apresentam resultados da magnetização, viscosidade, microestrutura e diferenças de tensões normais de fluidos magnéticos, mostrando a formação de agregados de partículas e como esses agregados levam a uma resposta não-linear do fluido. Ivanov et al. [36] comparam modelos analíticos de magnetização com simulações numéricas e resultados experimentais, obtendo ótima concordância entre os mesmos.

Cunha et al. [37] estudaram a dinâmica envolvida na interação entre duas partículas magnéticas, considerando a força e o torque atuantes. Foi verificada a quebra de simetria resultante das interações entre as partículas. Ainda envolvendo simulações de partículas, recentemente Gontijo [38] simulou a sedimentação de partículas de um fluido magnético sob a ação de um campo. Foi analisada a magnetização e o efeito das interações hidrodinâmicas no comportamento da suspensão.

Considerando escoamento de fluidos magnéticos em tubos capilares, Cunha e Sobral [11] desenvolveram uma solução por método de perturbação para esse problema considerando a variação da magnetização pela vorticidade do escoamento. Neste trabalho os autores es-

tudam ainda o comportamento de um sistema bifásico composto por um fluido magnético e um fluido newtoniano em escoamento capilar. Rosa e Cunha [39] estudaram numericamente o escoamento de um fluido magnético em tubo capilar com a presença de um campo magnético, mostrando como a viscosidade é alterada.

## 1.3 OBJETIVOS

### 1.3.1 Objetivos Gerais

Neste trabalho é desenvolvido, experimental e numericamente, um estudo de fluidos magnéticos. Primeiramente, na parte experimental, são ensaiados dois fluidos: uma suspensão de magnetita em óleo mineral e um ferrofluido formado por nanopartículas de maghemita em óleo naftênico. Os fluidos são ensaiados em um reômetro de discos paralelos rotativos sujeitos a diferentes taxas de cisalhamento, além de um campo externo variável. Nesses ensaios é analisada a resposta viscosa dos fluidos em função da taxa de cisalhamento, do campo magnético aplicado e da fração volumétrica (para a suspensão de óleo mineral). Além disso é feita uma análise da estrutura do material utilizando um microscópio, mostrando como a formação de estruturas na presença de campo magnético afeta o comportamento reológico da suspensão.

Em seguida é feita uma análise numérica de um fluido magnético simulando as interações dipolares entre as partículas magnéticas. Esse estudo é feito usando os métodos de Monte Carlo e Dinâmica de Langevin, com condições de contorno do domínio físico dadas por mínima imagem e somas de Ewald [4]. A magnetização do fluido é determinada e são feitas comparações entre os métodos, mostrando quando é possível utilizar a condição de mínima imagem, que apresenta menor custo computacional. A estrutura da suspensão também é analisada, mostrando como o campo magnético externo aplicado e a intensidade das interações entre as partículas afeta a formação de agregados. É feita uma análise dinâmica do sistema, sendo obtidas propriedades como a magnetização e a viscosidade rotacional, em função da fração volumétrica, do campo, da intensidade de interação entre os dipolos e da taxa de cisalhamento.

### 1.3.2 Objetivos Específicos

Na parte experimental:

1. Medir a viscosidade de uma suspensão de magnetita em óleo mineral em função da

fração volumétrica de partículas para diferentes campos magnéticos aplicados.

2. Obter a viscosidade em função da taxa de cisalhamento com e sem a presença de campo magnético externo, mostrando um comportamento quase newtoniano quando não há campo.
3. Determinar a viscosidade em função do campo magnético para diferentes taxas de cisalhamento e com fração volumétrica de partículas fixa.
4. Medir a viscosidade de um ferrofluido em função da taxa de cisalhamento e do campo magnético. Analisar como a viscosidade varia em função da taxa de cisalhamento quando há campo e quando o mesmo é nulo.

Na parte numérica:

1. Determinar a magnetização de equilíbrio usando os métodos de Monte Carlo e Dinâmica de Langevin.
2. Mostrar em que condições é válido o modelo de aproximação de Mínima Imagem e em que condições devem ser utilizadas as somas de Ewald (somas em Lattices periódicas).
3. Calcular a função de distribuição radial de equilíbrio para diferentes condições de campo e de interação entre os dipolos.
4. Estudar o comportamento da magnetização quando há cisalhamento presente.
5. Determinar numericamente a viscosidade rotacional (aumento da viscosidade causado pelo alinhamento das partículas com o campo magnético) e comparar com resultados analíticos. Fazer uma comparação qualitativa entre os resultados numéricos e os experimentais.

A presente dissertação se encontra assim dividida: no capítulo 2 são expostos os conceitos básicos que se fazem necessários para o entendimento dos assuntos abordados, como as formulações da mecânica dos fluidos e as equações do eletromagnetismo. No capítulo 3 são apresentados os modelos de magnetização que serão utilizados para comparar com os resultados. No capítulo 4 é feita uma apresentação do instrumental do Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia do VORTEX (Grupo de Mecânica dos Fluidos de Escoamentos Complexos do Departamento de Engenharia Mecânica da Universidade de Brasília) utilizado para caracterizar os fluidos magnéticos, sendo os resultados apresentados no capítulo 5. No capítulo 6 são desenvolvidas as metodologias numéricas utilizadas na simulação de fluidos magnéticos. No capítulo 7 os resultados da parte numérica são apresentados. Por fim uma conclusão com sugestões para trabalhos futuros é apresentada no capítulo 8.

# Capítulo 2

## Fundamentação Teórica

Neste capítulo são apresentadas os princípios do eletromagnetismo e da mecânica dos fluidos, necessários para o desenvolvimento do presente trabalho.

### 2.1 ELETROMAGNETISMO

#### 2.1.1 Definições

Seja uma partícula com carga elétrica  $q$  se deslocando no espaço livre com uma velocidade  $\mathbf{v}$ . A indução magnética ou vetor fluxo magnético  $\mathbf{B}$  existente nessa região faz com que atue uma força dada por:

$$\mathbf{F} = q\mathbf{v} \times \mathbf{B} . \quad (2.1)$$

A unidade no SI para  $\mathbf{B}$  é  $Ns/Cm$ , denominada tesla (T). A indução magnética presente em um ponto é resultado da soma de duas contribuições magnéticas, uma devido ao vetor campo magnético  $\mathbf{H}$  e outra como resultado do vetor magnetização  $\mathbf{M}$  do material. Assim:

$$\mathbf{B} = \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M}) , \quad (2.2)$$

em que  $\mu_0$  é a constante de permeabilidade magnética no vácuo ou espaço livre com valor de  $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} H/m$ , e  $\mathbf{H}$  e  $\mathbf{M}$  têm unidade  $A/m$ . Uma unidade convencionalmente utilizada para indução magnética é o gauss (G) e é igual a  $10^{-4}$  T. O campo magnético médio da Terra é de aproximadamente 0,7 G de magnitude. Nos laboratórios de magnetismo o que geralmente se mede é a magnitude do vetor indução. Desta forma, conhecendo-se a magnetização do material, determina-se o campo magnético por meio da relação

$$\mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_0} - \mathbf{M} . \quad (2.3)$$

Na situação em que  $\mathbf{H}$  e  $\mathbf{M}$  são paralelos, a equação (2.2) pode ser reescrita em termos da susceptibilidade  $\chi$  ou da permeabilidade relativa  $K_m$  do fluido, definidas como:

$$K_m = \frac{\mu}{\mu_0} = 1 + \chi , \quad (2.4)$$

em que  $\mu$  é a permeabilidade do fluido magnético. Assim:

$$\mathbf{M} = (K_m - 1)\mathbf{H} = \chi\mathbf{H} \quad (2.5)$$

e

$$\mathbf{B} = \mu\mathbf{H} . \quad (2.6)$$

Para o vácuo  $K_m = 1$  e  $\chi = 0$ , já que não existem dipolos magnéticos para serem alinhados ao campo, o que leva a  $\mathbf{B} = \mu_0\mathbf{H}$ . Para materiais paramagnéticos a permeabilidade relativa é ligeiramente maior que 1, enquanto que para materiais diamagnéticos é pouco menor que 1. Para materiais ferromagnéticos a relação entre  $\mathbf{B}$  e  $\mathbf{H}$  não é linear. Além disso, para determinar a magnetização do material é necessário conhecer a história magnética do fluido, ou seja, o fluido apresenta memória magnética devido à histerese em sua curva de magnetização. Para fluidos superparamagnéticos diluídos não há histerese na curva de magnetização, o que significa que não há memória magnética. No entanto a relação entre os vetores  $\mathbf{B}$  e  $\mathbf{H}$  é linear apenas para baixos campos magnéticos aplicados, sendo não-linear para campos mais intensos devido ao alinhamento de um número cada vez maior de partículas até que condição de saturação, que é o alinhamento de todas as partículas com o campo, seja alcançada.

### 2.1.2 Lei de Coulomb para o Magnetismo

No magnetismo, diferentemente do que ocorre na eletricidade, não existe uma carga isolada, ou monopolo magnético, apesar de muitas aplicações serem baseadas nesse conceito abstrato [40]. O conceito fundamental é o dipolo magnético. Todo ímã ou material magnético tem dois pólos, o sul e o norte, ou o positivo e o negativo, que não podem ser separados. Se, por exemplo, uma barra magnetizada for cortada ao meio, teremos dois ímãs. Se essas duas barras forem novamente divididas ao meio teremos quatro ímãs, e assim sucessivamente. Mesmo que essas barras continuassem sendo divididas até que fossem

alcançadas dimensões atômicas e restassem barras compostas de um único átomo, estas ainda teriam um pólo norte e um pólo sul, cada uma [40].

A definição de campo magnético pode ser feita usando a lei de Coulomb. Sejam dois pólos pontuais de intensidades  $p_s$  e  $p'_s$  separados no vácuo por uma distância  $\mathbf{r}$ . A força magnética existente entre eles é dada por:

$$\mathbf{F} = \frac{p_s p'_s \hat{\mathbf{r}}}{4\pi\mu_0 r^2}, \quad (2.7)$$

podendo ser reescrita como:

$$\mathbf{F} = p'_s \mathbf{H}, \quad (2.8)$$

com

$$\mathbf{H} = \frac{p_s \hat{\mathbf{r}}}{4\pi\mu_0 r^2}. \quad (2.9)$$

O campo magnético  $\mathbf{H}$  representa a força por unidade de pólo em torno de um pólo teste  $p_s$ .

### 2.1.3 Vetores Momento de Dipolo e Magnetização

A caracterização do dipolo magnético é feita pela grandeza vetorial  $\mathbf{m}$  (com unidade  $Am^2$ , no SI), definida como momento de dipolo magnético. É importante mencionar que enquanto o vetor momento de dipolo é uma característica de uma partícula em uma suspensão coloidal magnética (i.e. fluido magnético), o vetor magnetização pode ser visto como uma propriedade magnética global ou contínua de um fluido magnético. Seja uma suspensão coloidal magnética estatisticamente homogênea tal que o uso da média volumétrica se justifique pela ergodicidade [29]. Define-se a média volumétrica dos momentos de dipolo como:

$$\langle \mathbf{m} \rangle (\mathbf{x}, t) = \frac{1}{V} \int_V \mathbf{m}(\mathbf{y}, t) dV, \quad (2.10)$$

em que  $\mathbf{x}$  é a posição do ponto no contexto do contínuo e  $\mathbf{y}$  percorre o interior do volume infinitesimal, no limite do contínuo, em torno deste ponto (ver figura 2.1).  $V$  é o volume total de material nesta região e é a soma do volume de fluido base  $V_f$  e do volume de partículas magnéticas  $V_p$ , resultando em [29]:

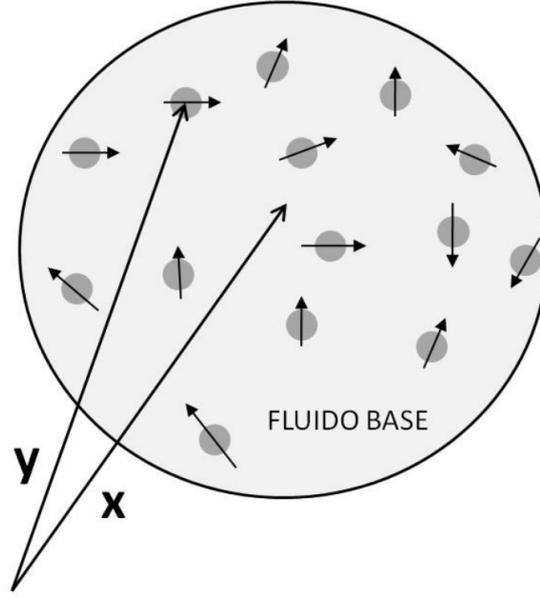


Figura 2.1: Representação de um volume contínuo de uma suspensão coloidal magnética. Os momentos das partículas estão aleatoriamente orientados.  $\mathbf{x}$  está fixo e representa um ponto na descrição contínua enquanto  $\mathbf{y}$  percorre o interior do volume indicando onde há partícula.

$$\langle \mathbf{m} \rangle (\mathbf{x}, t) = \frac{1}{V} \left[ \int_{V_f} \mathbf{m}(\mathbf{y}, t) dV_f + \int_{V_p} \mathbf{m}(\mathbf{y}, t) dV_p \right]. \quad (2.11)$$

A contribuição da integral no volume de fluido base se anula já que  $\mathbf{m}(\mathbf{y}, t) = \mathbf{0}$  quando  $\mathbf{y}$  não está sobre uma partícula. Então resulta:

$$\langle \mathbf{m} \rangle (\mathbf{x}, t) = \frac{1}{V} \int_{V_p} \mathbf{m}(\mathbf{y}, t) dV_p. \quad (2.12)$$

O volume total de partículas  $V_p$  é dado por:

$$V_p = \sum_{i=1}^N v_p^i, \quad (2.13)$$

em que  $N$  é o número de partículas e  $v_p^i = \pi\sigma_i^3/6$  é o volume da partícula  $i$ , sendo  $\sigma_i$  o seu diâmetro. Seja  $\mathbf{m}^i$  o momento de dipolo da partícula  $i$ , a integral da equação (2.12) pode ser interpretada em termos discretos como sendo [29]:

$$\int_{V_p} \mathbf{m}(\mathbf{y}, t) dV_p = \sum_{i=1}^N \mathbf{m}^i v_p^i. \quad (2.14)$$

Considera-se, por simplicidade, que o volume de todas as partículas é igual a  $v_p$ , ou seja, todas as partículas possuem o mesmo diâmetro  $\sigma$ . Portanto, a equação (2.12) pode ser reescrita como:

$$\langle \mathbf{m} \rangle (\mathbf{x}, t) = \left( \frac{1}{V} \right) v_p \sum_{i=1}^N \mathbf{m}^i = v_p \left( \frac{N}{V} \right) \left( \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \mathbf{m}^i \right). \quad (2.15)$$

Mas

$$\bar{\mathbf{m}} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \mathbf{m}^i \quad (2.16)$$

é a média dos momentos de dipolo na direção do campo e

$$n = \frac{N}{V} \quad (2.17)$$

é o número de densidade. Assim:

$$\langle \mathbf{m} \rangle = n v_p \bar{\mathbf{m}} \quad \leftrightarrow \quad \frac{\langle \mathbf{m} \rangle}{v_p} = n \bar{\mathbf{m}}. \quad (2.18)$$

Seja definir

$$\mathbf{M} = \frac{\langle \mathbf{m} \rangle}{v_p}, \quad (2.19)$$

conclui-se, então, que:

$$\mathbf{M} = n \bar{\mathbf{m}}. \quad (2.20)$$

O que demonstra que a magnetização é momento de dipolo magnético por unidade de volume. Fisicamente,  $\mathbf{M}$  denota o estado de polarização do material na presença de um campo magnético [11]. Para fluidos magnéticos, em que cada partícula pode ser interpretada como um nanoímã, em primeira análise, a magnetização  $\mathbf{M}$  representa o grau de alinhamento dos dipolos com o campo aplicado.

#### 2.1.4 As Equações de Maxwell

São apresentadas e descritas nesta seção as quatro equações que formam as bases do eletromagnetismo, em suas formas integrais.

### 2.1.4.1 Lei de Gauss da Eletricidade

A lei de Gauss da eletricidade é formulada como:

$$\iint_S \mathbf{E} \cdot d\mathbf{A} = q/\epsilon_0 , \quad (2.21)$$

em que  $\mathbf{E}$  é o campo elétrico,  $\mathbf{A}$  é o vetor ortogonal à superfície  $S$ ,  $q$  é a soma de todas as cargas positivas e negativas que estão no interior de  $S$ , e  $\epsilon_0$  é a constante de permissividade do vácuo, que vale  $8,85 \times 10^{-12} C^2/Nm^2$ . A superfície  $S$  deve ser *gaussiana*, i.e., fechada de maneira que os pontos que estão em seu interior, em sua superfície e em seu exterior sejam claramente distinguidos. A equação (2.21) afirma que a taxa líquida de campo elétrico  $\mathbf{E}$  através de  $S$  é igual, a menos de uma constante, à soma das cargas que estão no interior dessa superfície.

### 2.1.4.2 Lei de Gauss do Magnetismo

Esta lei é consequência direta do fato de não haver uma carga magnética isolada, afirmando que o fluxo de indução magnética  $\mathbf{B}$  que atravessa uma superfície fechada é nulo, ou seja,

$$\iint_S \mathbf{B} \cdot d\mathbf{A} = 0 , \quad (2.22)$$

que, pelo teorema da divergência [41], pode ser escrita como

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 , \quad (2.23)$$

mostrando que a indução magnética é um campo solenoidal. Na equação (2.23)  $\nabla = \frac{\partial}{\partial x_k} \hat{\mathbf{e}}_k$  é um operador diferencial.

### 2.1.4.3 Lei de Faraday

Também conhecida como Lei da Indução Eletromagnética, postula que há o surgimento de uma campo elétrico quando há uma variação temporal da taxa de indução magnética, ou seja,

$$\oint_C \mathbf{E} \cdot d\mathbf{s} = -\frac{\partial}{\partial t} \left( \iint_S \mathbf{B} \cdot d\mathbf{A} \right) , \quad (2.24)$$

em que  $t$  representa o tempo,  $C$  é qualquer caminho fechado, com vetor tangente  $\mathbf{s}$ , que possa ser traçado num campo magnético, e  $S$  é a superfície delimitada por  $C$ .

#### 2.1.4.4 Lei de Ampère-Maxwell

A lei de Ampère-Maxwell é escrita como:

$$\oint_C \mathbf{B} \cdot d\mathbf{s} = \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} \left( \iint_S \mathbf{E} \cdot d\mathbf{A} \right) + \mu_0 I , \quad (2.25)$$

estabelecendo que o valor da integral de linha de  $\mathbf{B}$  é função da taxa de variação temporal de campo elétrico e da corrente que atravessa a curva  $C$  na qual a integral de linha é calculada. Essa lei foi primeiramente proposta por Ampère, mas sem o termo de variação temporal, que mais tarde foi introduzido por Maxwell.

A partir da equação (2.25) pode-se encontrar a expressão para o vetor campo magnético, apresentada anteriormente na equação (2.2). Considere que a variação temporal da taxa de campo elétrico seja nula (i.e., regime eletrostático permanente). Quando há a presença de um material ferromagnético com uma magnetização  $\mathbf{M}$ , um termo deve ser acrescentado à equação (2.25), assim:

$$\oint_C \mathbf{B} \cdot d\mathbf{s} = \mu_0 I + \oint_C \mu_0 \mathbf{M} \cdot d\mathbf{s} , \quad (2.26)$$

que pode ser escrita como:

$$\oint_C \left( \frac{\mathbf{B} - \mu_0 \mathbf{M}}{\mu_0} \right) \cdot d\mathbf{s} = I . \quad (2.27)$$

Portanto, a lei de Ampère pode ser reescrita para ser incluída a presença de materiais com magnetização da seguinte forma:

$$\oint_C \mathbf{H} \cdot d\mathbf{s} = I . \quad (2.28)$$

Finalmente, utilizando o Teorema de Stokes, tem-se:

$$\iint_S (\nabla \times \mathbf{H}) \cdot d\mathbf{A} = I . \quad (2.29)$$

### 2.1.5 Limite Magnetostático

O foco da ferrohodinâmica é estudar o efeito de um campo magnético sobre um fluido polar. Assim, na ausência de corrente elétrica, considerando-se o campo elétrico em regime permanente e desprezando-se a variação do campo magnético com o tempo, as equações de Maxwell se reduzem a:

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad e \quad \nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{0} . \quad (2.30)$$

As relações na equação (2.30) definem o *limite magnetostático de Maxwell*. As condições de contorno para esses campos impõe que as componentes normal de  $\mathbf{B}$  e tangencial de  $\mathbf{H}$  são contínuas ao longo da interface que separa materiais magnéticos com propriedades diferentes.

### 2.1.6 Forças e Torques Magnéticos

Em uma partícula, ou dipolo magnético, atuam forças e torques magnéticos devido interação com o campo externo aplicado e devido interações com outros dipolos.

Para calcular a força magnética em um corpo magnetizado devido o campo, considere a figura (2.2). Nela está representado um pequeno elemento cilíndrico de uma substância magnética polarizada cujo eixo geométrico  $\mathbf{d}$  está alinhado com o vetor magnetização  $\mathbf{M}$ . Sobre esse elemento atua um campo magnético  $\mathbf{H}_0$ , e pólos de densidade  $\rho_s = \mu_0 M$  surgem nas áreas representadas por  $a_d$ , com polaridade invertida. Como o campo magnético aplicado pode ser interpretado como força magnética por pólo magnético, a força que atua sobre o elemento é dada por:

$$\mathbf{F}^h = -\mathbf{H}_0 \rho_s a_d + (\mathbf{H}_0 + \delta \mathbf{H}_0) \rho_s a_d = \delta \mathbf{H}_0 \rho_s a_d , \quad (2.31)$$

em que  $\delta \mathbf{H}_0$  é a variação de  $\mathbf{H}_0$  na direção de  $\mathbf{d}$ . Assim, uma aproximação de primeira ordem para  $\delta \mathbf{H}_0$  usando série de Taylor resulta em:

$$\delta \mathbf{H}_0 = \mathbf{H}_0(\mathbf{x} + \mathbf{d}) - \mathbf{H}_0(\mathbf{x}) = (\mathbf{d} \cdot \nabla) \mathbf{H}_0 . \quad (2.32)$$

Como  $\mathbf{d}$  e  $\mathbf{M}$  estão alinhados,

$$\delta \mathbf{H}_0 = \frac{d}{M} (\mathbf{M} \cdot \nabla) \mathbf{H}_0 , \quad (2.33)$$

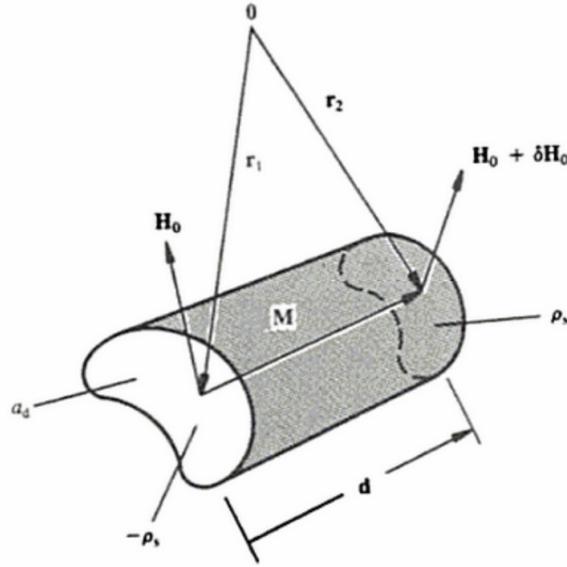


Figura 2.2: Esquema de um gradiente de campo magnético atuando em um pequeno elemento de uma substância magnética polarizada [2].

em que  $d$  é a amplitude de  $\mathbf{d}$ . A densidade de força é dada então por:

$$\frac{\mathbf{F}^h}{\delta V} = \frac{\delta \mathbf{H}_0 \rho_s a_d}{d a_d} = \frac{\rho_s}{M} (\mathbf{M} \cdot \nabla) \mathbf{H}_0 . \quad (2.34)$$

Mas  $\rho_s/M = \mu_0$ , o que leva a:

$$\frac{\mathbf{F}^h}{\delta V} = \mu_0 (\mathbf{M} \cdot \nabla) \mathbf{H}_0 . \quad (2.35)$$

Sendo  $\delta V$  o volume de uma partícula, então:

$$\mathbf{F}^h = \mu_0 (\mathbf{m} \cdot \nabla) \mathbf{H}_0 . \quad (2.36)$$

Portanto, como mostra (2.36), só existe uma força magnética, devido ao campo externo, atuando sobre um dipolo quando este campo não é uniforme.

O torque atuando em um pequeno volume de matéria polarizada magneticamente também pode ser deduzido a partir da figura (2.2). Considerando  $d$  pequeno o suficiente para que não haja variação do campo aplicado, i.e.,  $\delta \mathbf{H}_0 = \mathbf{0}$ , a soma dos momentos em torno da origem é:

$$\mathbf{T}^h = \rho_s a_d (-\mathbf{r}_1 \times \mathbf{H}_0 + \mathbf{r}_2 \times \mathbf{H}_0) , \quad (2.37)$$

em que  $\mathbf{r}_1$  e  $\mathbf{r}_2$  são os vetores posição das faces com relação à origem. Da figura:

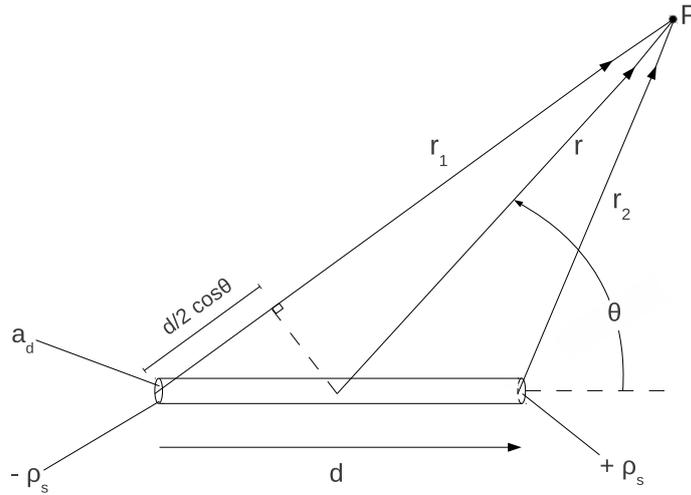


Figura 2.3: Esquema para calcular o campo magnético em um ponto  $P$  devido a presença de um dipolo.

$$\mathbf{r}_2 = \mathbf{r}_1 + \mathbf{d} \quad (2.38)$$

ou

$$\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1 = \mathbf{d} . \quad (2.39)$$

Substituindo (2.39) em (2.37) e dividindo pelo volume do elemento tem-se a densidade de torque:

$$\frac{\mathbf{T}^h}{\delta V} = \mu_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H}_0 , \quad (2.40)$$

ou

$$\mathbf{T}^h = \mu_0 \mathbf{m} \times \mathbf{H}_0 , \quad (2.41)$$

Portanto, o torque aparece devido ao desalinhamento entre o vetor magnetização e o campo magnético.

## 2.1.7 Interação Dipolar

Para calcular as interações entre os dipolos, considere a figura (2.3), de [2]. O campo magnético em um ponto  $P$  próximo a um dipolo é dado pela Lei de Coulomb:

$$\mathbf{H}^d(\mathbf{r}) = \frac{\rho_s a_d}{4\pi\mu_o} \left( -\frac{\mathbf{r}_1}{r_1^3} + \frac{\mathbf{r}_2}{r_2^3} \right) . \quad (2.42)$$

Na equação (2.42),  $\mathbf{r}_1 = \mathbf{d}/2 + \mathbf{r}$  e  $\mathbf{r}_2 = -\mathbf{d}/2 + \mathbf{r}$ . Considerando  $d \ll r$ , ou seja, as distâncias entre os dipolos são muito maiores que os tamanhos dos próprios dipolos, temos:

$$r_1 \approx r + \frac{d}{2} \cos \theta \quad (2.43)$$

e

$$r_2 \approx r - \frac{d}{2} \cos \theta . \quad (2.44)$$

Usando o teorema binomial,

$$r_1^{-3} \approx r^{-3} \left( 1 - \frac{3d}{2r} \cos \theta \right) \quad (2.45)$$

e

$$r_2^{-3} \approx r^{-3} \left( 1 + \frac{3d}{2r} \cos \theta \right) . \quad (2.46)$$

Substituindo (2.45) e (2.46) em (2.42):

$$\mathbf{H}^d(\mathbf{r}) \approx \frac{\rho_s a_d d}{4\pi\mu_o r^3} \left( -\hat{\mathbf{d}} + 3 \cos \theta \hat{\mathbf{r}} \right) . \quad (2.47)$$

Mas  $\cos \theta = \hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{r}}$ ,  $\rho_s = \mu_o M_d$  e  $v_p = a_d d$ , então:

$$\mathbf{H}^d(\mathbf{r}) \approx \frac{M_d v_p}{4\pi r^3} \left( -\hat{\mathbf{d}} + 3 (\hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{r}}) \hat{\mathbf{r}} \right) . \quad (2.48)$$

A equação (2.48) fornece o campo magnético em um ponto  $P$  distante de um dipolo. Essa relação será usada para determinar a energia de interação entre dois dipolos. A força magnética é dada por (2.34):

$$\mathbf{F} = \mu_o (\mathbf{m} \cdot \nabla) \mathbf{H} . \quad (2.49)$$

Considere a seguinte identidade vetorial:

$$(\mathbf{m} \cdot \nabla)\mathbf{H} = \nabla(\mathbf{m} \cdot \mathbf{H}) - \mathbf{H} \cdot \nabla\mathbf{m} - \mathbf{m} \times (\nabla \times \mathbf{H}) - \mathbf{H} \times (\nabla \times \mathbf{m}) . \quad (2.50)$$

Com  $\mathbf{m}$  constante:

$$(\mathbf{m} \cdot \nabla)\mathbf{H} = \nabla(\mathbf{m} \cdot \mathbf{H}) - \mathbf{m} \times (\nabla \times \mathbf{H}) . \quad (2.51)$$

No limite magnetostático de Maxwell (subseção 2.1.5):  $\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{0}$ . Então, a força pode ser escrita como o gradiente de uma energia potencial  $U_h$ :

$$\mathbf{F} = -\nabla U_h \quad (2.52)$$

em que

$$U_h = -\mu_o(\mathbf{m} \cdot \mathbf{H}_o) . \quad (2.53)$$

Considerando agora que o campo  $\mathbf{H}$  seja causado pela presença de um dipolo  $\mathbf{m}_2$  em um outro dipolo  $\mathbf{m}_1$ , a energia de interação entre os dois dipolos  $U_d$  é dada por:

$$U_d = -\mu_o m_1 \hat{\mathbf{d}}_1 \cdot \frac{m_2}{4\pi r^3} \left( -\hat{\mathbf{d}}_2 + 3(\hat{\mathbf{d}}_2 \cdot \hat{\mathbf{r}}) \hat{\mathbf{r}} \right) . \quad (2.54)$$

Assim:

$$U_d = \frac{\mu_o m_1 m_2}{4\pi r^3} \left( \hat{\mathbf{d}}_1 \cdot \hat{\mathbf{d}}_2 - 3(\hat{\mathbf{d}}_1 \cdot \hat{\mathbf{r}})(\hat{\mathbf{d}}_2 \cdot \hat{\mathbf{r}}) \right) , \quad (2.55)$$

em que  $\hat{\mathbf{d}}_i$  é o vetor unitário na direção do momento de dipolo da partícula  $i$  e  $\mathbf{r}$  é o vetor que sai do dipolo 1 e vai até o 2. Usando as equações (2.52) e (2.41) combinadas com o campo magnético gerado por um dipolo, temos as expressões para a força e o torque magnéticos no dipolo 1 causada pelo dipolo 2:

$$\mathbf{F}^d = \frac{3\mu_o m_1 m_2}{4\pi r^4} \{ (\mathbf{d}_1 \cdot \mathbf{d}_2) \hat{\mathbf{r}} + \mathbf{d}_1 (\mathbf{d}_2 \cdot \hat{\mathbf{r}}) + \mathbf{d}_2 (\mathbf{d}_1 \cdot \hat{\mathbf{r}}) - 5(\mathbf{d}_1 \cdot \hat{\mathbf{r}})(\mathbf{d}_2 \cdot \hat{\mathbf{r}}) \hat{\mathbf{r}} \} \quad (2.56)$$

e

$$\mathbf{T}^d = -\frac{\mu_o m_1 m_2}{4\pi r^3} \{ (\hat{\mathbf{d}}_1 \times \hat{\mathbf{d}}_2) - 3(\hat{\mathbf{d}}_1 \times \hat{\mathbf{r}})(\hat{\mathbf{d}}_2 \cdot \hat{\mathbf{r}}) \} . \quad (2.57)$$

A força magnética total que age sobre uma partícula é a soma da força devido ao campo  $\mathbf{F}^h$  com as forças devido interação com todos os outros dipolos no meio  $\mathbf{F}^d$ . Situação análoga é válida para o torque.

As relações desenvolvidas nesta subseção serão usadas na simulação numérica de fluidos magnéticos, contabilizando as interações entre as partículas e o campo e entre as partículas com outras partículas. Na simulação de Monte Carlo é usada a energia potencial de interação partícula-partícula e partícula-campo, e na Dinâmica de Langevin são usadas explicitamente as equações para as forças e os torques de interação partícula-partícula e partícula-campo nas equações de movimento translacional e rotacional das partículas, respectivamente.

Vale notar que a força de interação entre os dipolos possui decaimento rápido, proporcional a  $r^{-4}$ , enquanto o torque possui decaimento proporcional a  $r^{-3}$ , sendo de longo alcance, com decaimento relativamente lento. Este fato resultaria na possibilidade de utilização de um método híbrido na simulação, em que a força é calculada diretamente pelo método da mínima imagem e o torque por somas de Ewald em espaços periódicos. Interações hidrodinâmicas, por outro lado, possuem decaimento lento, proporcional a  $r^{-1}$ , impossibilitando sua determinação de maneira direta em simulações.

## 2.2 EQUAÇÕES DE BALANÇO DA MECÂNICA DOS MEIOS CONTÍNUOS

### 2.2.1 Equação do Balanço de Massas

A equação da conservação de massa é dada por [42]:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 , \quad (2.58)$$

em que  $\rho$  é a massa específica do fluido e  $\mathbf{u}$  é o campo de velocidade euleriano. Considerando que a variação da massa específica seja desprezível (fluido incompressível), que é o caso dos fluidos estudados neste trabalho, a equação (2.58) pode ser simplificada para:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 . \quad (2.59)$$

Neste caso o campo de velocidade  $\mathbf{u}$  é sempre solenoidal.

## 2.2.2 Equação do Balanço de Forças

A equação do balanço de forças para uma partícula elementar de um meio contínuo é dada pela equação de Cauchy [42]:

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} \right) = \nabla \cdot \boldsymbol{\Sigma} + \rho \mathbf{b}, \quad (2.60)$$

em que  $\boldsymbol{\Sigma}$  denota o tensor de tensões do fluido e  $\mathbf{b}$  representa as forças de campo por unidade de massa. O tensor de tensões determina a distribuição de tensões no meio contínuo representada pelas forças de superfície ou de contato. Do teorema de Cauchy:

$$\mathbf{f} = \hat{\mathbf{n}} \cdot \boldsymbol{\Sigma}(\mathbf{x}, t), \quad (2.61)$$

sendo  $\mathbf{f}$  um vetor de tensões (ou densidade de força de superfície) e  $\hat{\mathbf{n}}$  um vetor unitário normal à superfície. O vetor de tensões pode ser escrito como:

$$\mathbf{f} = (\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{f}) \hat{\mathbf{n}} + (\mathbf{I} - \hat{\mathbf{n}}\hat{\mathbf{n}}) \cdot \mathbf{f}, \quad (2.62)$$

em que a primeira parte do lado direito da equação representa a componente normal à superfície e a segunda parte a componente tangente à superfície. O tensor identidade é denotado por  $\mathbf{I}$ . Por outro lado as forças de campo são forças de volume que agem à distância, como a gravitacional e a magnética. O tensor de tensões para um fluido em geral é dado por:

$$\boldsymbol{\Sigma} = -p\mathbf{I} + \boldsymbol{\Gamma}^N + \boldsymbol{\Gamma}^{NN}, \quad (2.63)$$

em que  $p$  é a pressão hidrodinâmica,  $\boldsymbol{\Gamma}^N$  é o tensor de tensões hidrodinâmico newtoniano e  $\boldsymbol{\Gamma}^{NN}$  é o tensor devido efeitos não-newtonianos. Aqui  $\boldsymbol{\Gamma}^{NN}$  tem origem em efeitos magnéticos.

A pressão mecânica  $P$  é definida tomando-se o traço do tensor de tensões  $\boldsymbol{\Sigma}$  da equação (2.63):

$$P = -\frac{\Sigma_{ii}}{3} = p - \frac{1}{3} (\Gamma_{ii}^N + \Gamma_{ii}^{NN}). \quad (2.64)$$

No caso de  $\boldsymbol{\Gamma}^N$  e  $\boldsymbol{\Gamma}^{NN}$  serem deviatóricos, ou seja,  $\Gamma_{ii}^N = \Gamma_{ii}^{NN} = 0$ , a pressão mecânica reduz-se à pressão hidrodinâmica. A equação constitutiva para o tensor de tensões  $\boldsymbol{\Sigma}$ , que acopla os efeitos hidrodinâmicos e magnéticos, é desenvolvida na seção (2.4).

## 2.2.3 Equação do Balanço de Torques

### 2.2.3.1 Fluidos Não-Polares

Fluidos não-polares são definidos como fluidos em que os torques atuantes em uma dada região são resultantes apenas dos momentos diretos das forças que atuam no corpo, sejam essas forças de superfície ou de campo. Fluidos newtonianos e a maior parte dos fluidos não-newtonianos são não-polares. Seja descrever a equação de balanço de torques para uma partícula contínua de um fluido não-polar. Por definição o momento angular  $\mathbf{L}$  é dado por:

$$\mathbf{L} = \int_V \mathbf{r} \times \rho \mathbf{u} dV , \quad (2.65)$$

em que o vetor  $\mathbf{r}$  é a posição da partícula contínua relativa a um referencial não-inercial e  $V$  é o volume dessa partícula, ou volume material. A equação da conservação do momento angular é dada por [2, 43]:

$$\frac{D\mathbf{L}}{Dt} = \frac{D}{Dt} \int_V \rho (\mathbf{r} \times \mathbf{u}) dV = \int_V \rho (\mathbf{r} \times \mathbf{b}) dV + \int_S \mathbf{r} \times \mathbf{f} dS . \quad (2.66)$$

Na equação (2.66),  $D/Dt = (\partial/\partial t + \mathbf{u} \cdot \nabla)$  é a derivada total ou lagrangiana,  $\mathbf{b}$  representa as forças de campo, como apresentado na equação (2.60),  $\mathbf{f}$  é o vetor de tensões definido na equação (2.61) e  $S$  é a superfície que envolve o volume material. A equação (2.66) afirma que a taxa de variação do momento angular de um volume material de um fluido não-polar é igual ao somatório dos momentos das forças de campo que atuam nesse volume e dos momentos das forças de contato que agem na superfície que engloba o volume. Para escrever a equação (2.66) em uma formulação diferencial é necessário o teorema do transporte de Reynolds. Seja  $V$  um volume material e  $G(\mathbf{x}, t)$  qualquer função escalar, vetorial ou tensorial. O teorema do transporte de Reynolds pode ser escrito como:

$$\frac{D}{Dt} \int_V G(\mathbf{x}, t) dV = \int_V \frac{\partial G(\mathbf{x}, t)}{\partial t} dV + \int_S G(\mathbf{x}, t) \mathbf{u} \cdot \hat{\mathbf{n}} dS . \quad (2.67)$$

Uma relação importante é obtida desse teorema para a condição em que  $G = \rho G^*$ . Neste caso, o teorema do transporte de Reynolds se resume a:

$$\frac{D}{Dt} \int_V \rho G^* dV = \int_V \rho \frac{DG^*}{Dt} dV . \quad (2.68)$$

Utilizando a equação (2.68), a variação da quantidade de momento angular pode ser escrita como:

$$\frac{D\mathbf{L}}{Dt} = \frac{D}{Dt} \int_V \rho (\mathbf{r} \times \mathbf{u}) dV = \int_V \rho \frac{D}{Dt} (\mathbf{r} \times \mathbf{u}) dV . \quad (2.69)$$

Mas

$$\frac{D}{Dt} (\mathbf{r} \times \mathbf{u}) = \mathbf{u} \times \frac{D\mathbf{r}}{Dt} + \mathbf{r} \times \frac{D\mathbf{u}}{Dt} = \mathbf{u} \times \mathbf{u} + \mathbf{r} \times \frac{D\mathbf{u}}{Dt} = \mathbf{r} \times \frac{D\mathbf{u}}{Dt} \quad (2.70)$$

e, trabalhando com a integral de superfície, temos:

$$\int_S \mathbf{r} \times \mathbf{f} dS = \int_S \mathbf{r} \times (\hat{\mathbf{n}} \cdot \boldsymbol{\Sigma}) dS = - \int_S \hat{\mathbf{n}} \cdot (\boldsymbol{\Sigma} \times \mathbf{r}) dS . \quad (2.71)$$

Usando o teorema da divergência:

$$- \int_S \hat{\mathbf{n}} \cdot (\boldsymbol{\Sigma} \times \mathbf{r}) dS = \int_V \boldsymbol{\nabla} \cdot (\boldsymbol{\Sigma} \times \mathbf{r}) dV . \quad (2.72)$$

Da substituição dos resultados obtidos em (2.69), (2.70) e (2.72) em (2.66) conclui-se:

$$\int_V \left[ \rho \left( \mathbf{r} \times \frac{D\mathbf{u}}{Dt} \right) - \rho (\mathbf{r} \times \mathbf{b}) + \boldsymbol{\nabla} \cdot (\boldsymbol{\Sigma} \times \mathbf{r}) \right] dV = \mathbf{0} . \quad (2.73)$$

Como  $V$  é um volume arbitrário, pelo teorema da localização:

$$\rho \left( \mathbf{r} \times \frac{D\mathbf{u}}{Dt} \right) = \rho (\mathbf{r} \times \mathbf{b}) - \boldsymbol{\nabla} \cdot (\boldsymbol{\Sigma} \times \mathbf{r}) . \quad (2.74)$$

O desenvolvimento do último termo da equação (2.74) leva a:

$$-\boldsymbol{\nabla} \cdot (\boldsymbol{\Sigma} \times \mathbf{r}) = \mathbf{r} \times (\boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{\Sigma}) + \mathbf{A} , \quad (2.75)$$

em que  $\mathbf{A}$  é um vetor definido como:

$$\mathbf{A} = \boldsymbol{\epsilon} : \boldsymbol{\Sigma} , \quad (2.76)$$

em que  $\boldsymbol{\epsilon} = \epsilon_{ijk} \mathbf{e}_i \mathbf{e}_j \mathbf{e}_k$  é o tensor isotrópico de terceira ordem definido com base no permutador de Levi-Cevita. As componentes de  $\mathbf{A}$  são  $A_1 = \Sigma_{23} - \Sigma_{32}$ ,  $A_2 = \Sigma_{31} - \Sigma_{13}$  e  $A_3 = \Sigma_{12} - \Sigma_{21}$ . O caso em que  $\mathbf{A} = \mathbf{0}$  implica em  $\Sigma_{ij} = \Sigma_{ji}$ , ou seja, o tensor de tensões  $\boldsymbol{\Sigma}$  é simétrico quando  $\mathbf{A}$  é nulo.

Finalmente, substituindo (2.75) em (2.74) leva a

$$\rho \left( \mathbf{r} \times \frac{D\mathbf{u}}{Dt} \right) = \rho (\mathbf{r} \times \mathbf{b}) + \mathbf{r} \times (\nabla \cdot \boldsymbol{\Sigma}) + \mathbf{A} , \quad (2.77)$$

ou

$$\mathbf{r} \times \left( \rho \frac{D\mathbf{u}}{Dt} - \rho \mathbf{b} - \nabla \cdot \boldsymbol{\Sigma} \right) = \mathbf{A} . \quad (2.78)$$

O termo entre parenteses na equação (2.78) é nulo, devido a equação de Cauchy (2.60). Assim  $\mathbf{A} = \mathbf{0}$ . Portanto, para fluidos não-polares, o tensor de tensões será sempre simétrico, ou seja,  $\boldsymbol{\Sigma} = \boldsymbol{\Sigma}^T$ .

### 2.2.3.2 Fluidos Polares

Em um fluido polar a quantidade de momento angular não se conserva como descrito na subseção (2.2.3.1) para fluidos não-polares. O momento angular de uma partícula do contínuo é dado agora por um somatório do momento externo ou orbital  $\mathbf{r} \times \mathbf{u}$  e do momento interno ou *spin*  $\mathbf{s}$  [2, 44] :

$$\mathbf{L} = \int_V [(\mathbf{r} \times \rho \mathbf{u}) + \rho \mathbf{s}] dV . \quad (2.79)$$

No caso de um fluido magnético, o momento interno é associado às partículas sólidas imersas no fluido base que possuem velocidade intrínseca causada pela interação magnética do momento de dipolo com o campo magnético externo aplicado. Analogamente ao que ocorre com o momento linear, a variação do momento angular interno é causada por torques que agem à distância  $\mathbf{G}$  e por torques de superfície  $\mathbf{c}$ . Assim, a equação do balanço de torque para um fluido polar é dada por:

$$\frac{D}{Dt} \int_V [\rho (\mathbf{r} \times \mathbf{u}) + \rho \mathbf{s}] dV = \int_V (\rho \mathbf{G} + \mathbf{r} \times \rho \mathbf{b}) dV + \int_S (\mathbf{c} + \mathbf{r} \times \mathbf{f}) dS . \quad (2.80)$$

O vetor torque de superfícies pode ser escrito em função de um tensor de torques de superfície  $\mathbf{C}$ :

$$\mathbf{c} = \hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{C} . \quad (2.81)$$

Substituindo (2.81) em (2.80) e usando o teorema da divergência juntamente com o teorema do transporte de Reynolds (2.68) temos:

$$\int_V \frac{D}{Dt} [\rho(\mathbf{r} \times \mathbf{u}) + \rho \mathbf{s}] dV = \int_V (\rho \mathbf{G} + \mathbf{r} \times \rho \mathbf{b}) dV + \int_V [\nabla \cdot \mathbf{C} + \mathbf{r} \times (\nabla \cdot \boldsymbol{\Sigma}) + \mathbf{A}] dV . \quad (2.82)$$

Sendo  $V$  um volume arbitrário, a utilização do teorema da localização juntamente com a relação dada por (2.70) levam a:

$$\mathbf{r} \times \rho \frac{D\mathbf{u}}{Dt} + \rho \frac{D\mathbf{s}}{Dt} = \rho \mathbf{G} + \mathbf{r} \times \rho \mathbf{b} + \nabla \cdot \mathbf{C} + \mathbf{r} \times (\nabla \cdot \boldsymbol{\Sigma}) + \mathbf{A} . \quad (2.83)$$

Rearranjando:

$$\mathbf{r} \times \left( \rho \frac{D\mathbf{u}}{Dt} - \rho \mathbf{b} - \nabla \cdot \boldsymbol{\Sigma} \right) + \rho \frac{D\mathbf{s}}{Dt} = \rho \mathbf{G} + \nabla \cdot \mathbf{C} + \mathbf{A} . \quad (2.84)$$

Da equação de Cauchy (2.60), o termo entre parenteses na equação (2.84) é nulo. Assim:

$$\rho \frac{D\mathbf{s}}{Dt} = \rho \mathbf{G} + \nabla \cdot \mathbf{C} + \mathbf{A} . \quad (2.85)$$

A relação (2.85) é a equação diferencial de variação do momento angular interno  $\rho \mathbf{s}$ . O termo  $\rho \mathbf{G}$  está associado com a transmissão de torques a distância, como o causado por um campo magnético. A parcela  $\nabla \cdot \mathbf{C}$  pode ser interpretada como a difusão de momento angular interno pela superfície. O vetor  $\mathbf{A}$ , definido em (2.76), representa a troca de momento angular entre os tipos interno e externo, ou seja, o vetor  $\mathbf{A}$  faz a conexão entre o momento angular orbital e o *spin* da partícula. Quando  $\mathbf{A}$  é não-nulo o tensor de tensões  $\boldsymbol{\Sigma}$  é assimétrico.

Para um fluido polar a equação da conservação do momento angular externo é dada por:

$$\frac{D}{Dt} \int_V \rho(\mathbf{r} \times \mathbf{u}) dV = \int_V \rho(\mathbf{r} \times \mathbf{b}) dV + \int_S \mathbf{r} \times \mathbf{f} dS - \int_V \mathbf{A} dV , \quad (2.86)$$

mostrando que há uma perda de momento angular externo associada a  $\mathbf{A}$  que é convertida em um ganho de momento angular interno.

## 2.3 MOVIMENTO BROWNIANO

Partículas com dimensões nano ou micrométricas suspensas em um fluido estão sujeitas a um movimento aleatório isotrópico e sem memória causado pelo choque constante de moléculas do fluido base. Esse movimento foi observado primeiramente em 1827 pelo botânico Robert

Brown, e por isso recebe o nome de movimento Browniano. Em 1905, Einstein [45] desenvolveu uma teoria quantitativa para esse fenômeno, mostrando que medidas precisas desse movimento poderiam revelar o tamanho das moléculas. Em 1908, Langevin desenvolveu uma metodologia mais direta para o estudo do movimento Browniano, seguindo a trajetória de uma partícula. A equação do movimento de Langevin, em uma dimensão, é dada por:

$$m \frac{d^2x}{dt^2} = -3\pi\eta\sigma \frac{dx}{dt} + F . \quad (2.87)$$

Na equação (2.87)  $m$  é a massa da partícula,  $x$  é a posição da partícula e  $F$  é uma força aleatória produzida pelas flutuações térmicas das moléculas. A força  $F$  possui média temporal nula:

$$\langle F(t) \rangle = 0 . \quad (2.88)$$

Multiplicando a equação (2.87) por  $x$  resulta:

$$mx \frac{d^2x}{dt^2} = -3\pi\eta\sigma x \frac{dx}{dt} + xF . \quad (2.89)$$

Usando as identidades:

$$x \frac{dx}{dt} = \frac{1}{2} \frac{dx^2}{dt} \quad (2.90)$$

e

$$x \frac{d^2x}{dt^2} = \frac{1}{2} \frac{d^2x^2}{dt^2} - \left( \frac{dx}{dt} \right)^2 , \quad (2.91)$$

temos:

$$\frac{m}{2} \frac{d^2x^2}{dt^2} - m \left( \frac{dx}{dt} \right)^2 = -\frac{3}{2}\pi\eta\sigma \frac{dx^2}{dt} + xF . \quad (2.92)$$

A média em um tempo suficientemente longo da equação (2.92) leva a:

$$m \frac{d^2\langle x^2 \rangle}{dt^2} + 3\pi\eta\sigma \frac{d\langle x^2 \rangle}{dt} = 2m \left\langle \left( \frac{dx}{dt} \right)^2 \right\rangle , \quad (2.93)$$

em que  $\langle x^2 \rangle$  representa o deslocamento médio quadrático da partícula. A energia cinética das partículas está relacionada a energia térmica do fluido da seguinte maneira:

$$m \left\langle \frac{dx}{dt} \right\rangle^2 = kT , \quad (2.94)$$

em que  $k = 1,38 \times 10^{-23} Nm/K$  é a constante de Boltzmann e  $T$  é a temperatura absoluta do fluido. Substituindo em (2.93) e resolvendo a equação, temos:

$$\langle x^2 \rangle = 2 \frac{kT}{3\pi\eta\sigma} t = 2 D_o^t t , \quad (2.95)$$

em que

$$D_o^t = \frac{kT}{3\pi\eta\sigma} \quad (2.96)$$

é o coeficiente de difusão Browniana de Stokes-Einstein. Nota-se que o deslocamento médio de uma partícula sujeita ao movimento Browniano é proporcional a  $t^{1/2}$ , em contraste com movimentos determinísticos como o movimento de queda livre, em que o deslocamento é proporcional ao quadrado do tempo de queda. Para uma partícula se deslocando em 3 dimensões, a equação (2.95) é escrita como [46]:

$$\frac{1}{3} \langle |\mathbf{r}(t)|^2 \rangle = 2 D_o^t t . \quad (2.97)$$

## 2.4 FORMALISMO CONSTITUTIVO

As equações de balanço apresentadas nas seções (2.1) e (2.2) são válidas em qualquer ponto e em qualquer instante de tempo em um meio contínuo. No entanto, as mesmas são insuficientes para determinar a caracterização do fluido em escoamento. São, portanto, necessárias equações adicionais, obtidas por observações experimentais ou por hipóteses, para descrever o contínuo em movimento, propondo uma equação para o tensor de tensões. Essas equações são denominadas equações constitutivas. Alguns princípios devem ser satisfeitos por possíveis candidatas a equação constitutiva [47]:

- (i) *Princípio da Consistência.* Qualquer equação constitutiva deve ser compatível com as equações de balanço de massa, momentum e energia.
- (ii) *Princípio da Causalidade.* O tensor de tensões deve depender da história recente do fluido.
- (iii) *Princípio da Invariância de Coordenadas.* A equação constitutiva deve manter a sua forma em qualquer sistema de coordenadas inercial, já que a escolha do sistema de coordenadas é arbitrário.

(iv) *Princípio da Objetividade.* Também definido como princípio da indiferença material do referencial, postula que o tensor de tensões deve ser objetivo, ou seja, deve obedecer à transformação

$$\boldsymbol{\Sigma}' = \mathbf{Q} \cdot \boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{Q}^T , \quad (2.98)$$

em que  $\mathbf{Q}$  representa um tensor ortogonal com componentes  $Q_{ij} = \hat{\mathbf{e}}'_i \cdot \hat{\mathbf{e}}_j$  e  $\boldsymbol{\Sigma}'$  é o valor que  $\boldsymbol{\Sigma}$  assume em outro referencial. Assim o tensor  $\boldsymbol{\Sigma}$  é invariante a uma transformação ortogonal ou rotação de corpo rígido.

Nesta seção são desenvolvidas equações constitutivas para o tensor de tensões  $\boldsymbol{\Sigma}$ , dividido em uma parte newtoniana  $\boldsymbol{\Gamma}^N$  associada à hidrodinâmica do escoamento e uma parte não-newtoniana  $\boldsymbol{\Gamma}^{NN}$  relativa a efeitos magnéticos.

### 2.4.1 Hidrodinâmica

No presente trabalho, propõe-se para  $\boldsymbol{\Gamma}^N$  um modelo de fluido newtoniano incompressível que, por definição, é sempre homogêneo, isotrópico e instantâneo. Trata-se de um material que apresenta viscosidade constante para uma dada temperatura e pressão, ou seja, a viscosidade não varia nem com a taxa nem com o tempo de cisalhamento. Além disso, a tensão no líquido se torna nula imediatamente após o término do cisalhamento, não existindo memória para essa classe de fluido. A equação que representa o tensor de tensões para um fluido newtoniano incompressível é dada por:

$$\boldsymbol{\Gamma}^N = \eta \left[ \boldsymbol{\nabla} \mathbf{u} + (\boldsymbol{\nabla} \mathbf{u})^T \right] = 2\eta \mathbf{D} . \quad (2.99)$$

em que  $\eta$  é a viscosidade do fluido e  $\mathbf{D}$  é o tensor taxa de deformação definido como a parte simétrica do  $\boldsymbol{\nabla} \mathbf{u}$ :

$$\mathbf{D} = \frac{1}{2} (\boldsymbol{\nabla} \mathbf{u} + (\boldsymbol{\nabla} \mathbf{u})^T) . \quad (2.100)$$

Substituindo a equação (2.63) com (2.99) na equação de balanço do momento linear de Cauchy, equação (2.60), tem-se:

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \boldsymbol{\nabla} \mathbf{u} \right) = -\boldsymbol{\nabla} p + \rho \mathbf{g} + \eta \nabla^2 \mathbf{u} + \boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{\Gamma}^{NN} . \quad (2.101)$$

A equação (2.101) é equivalente à equação de Navier-Stokes para fluidos incompressíveis modificada por um termo associado a tensões não-newtonianas. No presente contexto esse

último termo associa-se a forças ou torques magnéticos. Nota-se que o tensor  $\Gamma^N$  é simétrico. Portanto qualquer assimetria do tensor de tensões  $\Sigma$  é devido ao tensor  $\Gamma^{NN}$ .

## 2.4.2 Magnetismo: o Tensor de Maxwell

Apresentadas as equações para a força magnética e as equações de Maxwell, é desenvolvido nesta seção um tensor de tensões magnético para o caso de superparamagnetismo (ver seção (2.5)), em que não são considerados torques internos, ou seja,  $\mathbf{M}$  e  $\mathbf{H}$  são paralelos de acordo com a equação (2.40). Considere um ponto no espaço cercado de pequenos dipolos. O campo magnético  $\mathbf{H}$  produzido no referido ponto representa a força magnética por unidade de pólo. A densidade de força magnética local  $\mathbf{f}_m$ , equivalente a um vetor de tensões magnéticas, é dada por:

$$\mathbf{f}_m = \rho_v \mathbf{H} , \quad (2.102)$$

em que  $\rho_v$  é o número de pólos por unidade de volume. Da Lei de Gauss para o magnetismo, tem-se:

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = \frac{\rho_v}{\mu_0} \quad (2.103)$$

e conseqüentemente resulta na seguinte relação para densidade de pólo:

$$\rho_v = \mu_0 \nabla \cdot \mathbf{H} . \quad (2.104)$$

Então a equação (2.102) pode ser escrita como:

$$\mathbf{f}_m = \mu_0 \mathbf{H} (\nabla \cdot \mathbf{H}) . \quad (2.105)$$

A seguir a força  $\mathbf{f}_m$  será escrita em termos do divergente de um tensor de segunda ordem. Usando uma identidade vetorial tem-se:

$$\nabla \cdot (\mathbf{H}\mathbf{H}) = \mathbf{H} (\nabla \cdot \mathbf{H}) + \mathbf{H} \cdot \nabla \mathbf{H} . \quad (2.106)$$

Usando também a seguinte identidade:

$$\mathbf{H} \cdot \nabla \mathbf{H} = \nabla \left( \frac{1}{2} H^2 \right) - \mathbf{H} \times (\nabla \times \mathbf{H}) , \quad (2.107)$$

podemos reescrever  $\mathbf{f}_m$  como:

$$\mathbf{f}_m = \nabla \cdot \left( \mu_0 \mathbf{H} \mathbf{H} - \frac{1}{2} \mu_0 H^2 \mathbf{I} \right) , \quad (2.108)$$

já que, na condição do limite magnetostático de Maxwell,  $\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{0}$ . A quantidade entre parênteses na equação (2.108) é denominada *tensor de Maxwell no vácuo*.

Da relação (2.108) verifica-se que o tensor de tensões associado à densidade de força magnética para o caso do vácuo em que  $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$  pode ser expressa na forma:

$$\Sigma_m = -\frac{1}{2} \mu_0 H^2 \mathbf{I} + \mathbf{B} \mathbf{H} . \quad (2.109)$$

A equação (2.109) é então generalizada para o caso em que há magnetização, ou seja, em que  $\mathbf{B} = \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M})$ . Esse é o tensor de Maxwell quando existe um meio com magnetização não-nula, fundamental para o acoplamento dos efeitos magnéticos e hidrodinâmicos no movimento de um fluido magnético.

Considerando então que o tensor de tensões não-newtoniano  $\Gamma^{NN}$  é dado pelo tensor de Maxwell  $\Sigma_m$  definido na equação (2.109). Assim:

$$\Gamma^{NN} = -p_m \mathbf{I} + \mathbf{B} \mathbf{H} , \quad (2.110)$$

em que  $p_m = \frac{1}{2} \mu_0 H^2$  denota a pressão magnética. Substituindo  $\Gamma^{NN}$  dado pela equação (2.110) na equação (2.101) resulta:

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} \right) = -\nabla P + \eta \nabla^2 \mathbf{u} + \mu_0 \mathbf{M} \cdot \nabla \mathbf{H} , \quad (2.111)$$

em que

$$P = p - \rho \mathbf{g} \cdot \mathbf{x} \quad (2.112)$$

é a pressão mecânica do escoamento acrescida da contribuição do campo gravitacional. A equação (2.111) difere da equação tradicional de Navier-Stokes devido o termo  $\mu_0 \mathbf{M} \cdot \nabla \mathbf{H}$  que relaciona o gradiente do campo magnético com a magnetização local. Assim o efeito magnético para o caso em que torques internos estão ausentes só influencia no movimento do fluido quando o campo magnético aplicado é não-homogêneo. Usando a equação (2.6), o tensor de tensões  $\Gamma^{NN}$  para este caso superparamagnético, dado pela equação (2.110) pode ser escrito como:

$$\mathbf{\Gamma}^{NN} = -p_m \mathbf{I} + \mu \mathbf{H} \mathbf{H} . \quad (2.113)$$

Assim o tensor  $\mathbf{\Gamma}^{NN}$  é simétrico para o caso superparamagnético, em que não existem torques internos de origem magnética.

### 2.4.3 Presença de Torque Interno

Nesta seção considera-se que o fluido possui um torque magnético interno, ou seja, os vetores  $\mathbf{M}$  e  $\mathbf{H}$  estão desalinhados. Primeiramente é desenvolvido um tensor a partir da equação diferencial de variação do momento angular interno  $\rho \mathbf{s}$ , equação (2.85), válido para o caso em que o vetor campo magnético  $\mathbf{H}$  é homogêneo. Em seguida é apresentado um tensor mais geral, desenvolvido a partir do tensor de Maxwell, que pode ser usado em casos de torque interno e com variação espacial de  $\mathbf{H}$ .

O momento angular é escrito em termos de uma velocidade angular interna  $\boldsymbol{\omega}$ :

$$\mathbf{s} = J \boldsymbol{\omega} , \quad (2.114)$$

em que  $J$  representa o momento de inércia das partículas sólidas por unidade de massa. Uma equação constitutiva para  $\mathbf{C}$  é proposta de maneira similar à proposta para  $\mathbf{\Gamma}^N$  [2]:

$$\mathbf{C} = \eta' (\nabla \boldsymbol{\omega} + (\nabla \boldsymbol{\omega})^T) . \quad (2.115)$$

Na equação (2.115)  $\eta'$  é uma viscosidade angular e está relacionada à difusão de momento angular interno. Outra equação é proposta para  $\mathbf{G}$ . Este termo está associado a torques transmitidos a distância para a partícula fluida. Considera-se então uma analogia com o torque exercido sobre uma partícula isolada, como na equação (2.41):

$$\rho \mathbf{G} = \mu_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H} . \quad (2.116)$$

Substituindo os resultados propostos em (2.114), (2.115) e (2.116) na equação (2.85) temos:

$$\rho J \frac{D\boldsymbol{\omega}}{Dt} = \mu_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H} + \eta' \nabla (\nabla \cdot \boldsymbol{\omega}) + \eta' \nabla^2 \boldsymbol{\omega} + \mathbf{A} . \quad (2.117)$$

Com velocidade angular interna  $\boldsymbol{\omega}$  constante, obtém-se:

$$\mathbf{A} = -\mu_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H} . \quad (2.118)$$

O vetor  $\mathbf{A}$  está relacionado com a parte assimétrica do tensor de tensões  $\Sigma$ , com a relação dada por (2.76). Como  $\Gamma^N$  é simétrico, a assimetria de  $\Sigma$  está na parte não-newtoniana  $\Gamma^{NN}$ . Assim:

$$\Gamma^{NN} = \frac{1}{2} \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{A} = \frac{1}{2} \mu_0 (\mathbf{H}\mathbf{M} - \mathbf{M}\mathbf{H}) . \quad (2.119)$$

O divergente de  $\Gamma^{NN}$  é calculado e a equação do movimento (2.101) se torna:

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} \right) = -\nabla P + \eta \nabla^2 \mathbf{u} + \frac{1}{2} \mu_0 \nabla \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}) . \quad (2.120)$$

O último termo da equação (2.120) associa o torque magnético interno devido o desalinhamento médio dos momentos de dipolo das partículas em relação ao campo magnético com a variação da quantidade de momento linear, ou seja, esse torque interno, na escala da partícula, afeta o movimento macroscópico do fluido magnético. Essa característica é fundamental na interpretação do aumento da viscosidade observado em reômetros em que o campo magnético é considerado constante. O tensor de tensões  $\Sigma = \Gamma^N + \Gamma^{NN}$  é assimétrico para esse caso.

No entanto, na equação (2.120), não há influência no movimento do fluido devido variação do campo  $\mathbf{H}$  no espaço. Para solucionar este problema é proposto um tensor que possa ser usado quando  $\mathbf{H}$  é não-homogêneo e existem torques internos. Seja o tensor de Maxwell dado pela equação (2.108). O novo tensor de tensões é proposto substituindo o segundo  $\mu_0 \mathbf{H}$  por  $\mathbf{B}$ . Assim:

$$\Gamma^{NN} = -p_m \mathbf{I} + \mathbf{H}\mathbf{B} , \quad (2.121)$$

Para mostrar que o tensor proposto na equação (2.121) satisfaz o princípio da invariância, temos que:

$$H'_i = Q_{ip} H_p \quad (2.122)$$

e

$$B'_j = Q_{jq} B_q . \quad (2.123)$$

Assim:

$$\Gamma_{ij}^{NN'} = \mu_0 Q_{ip} H_p Q_{jq} B_q . \quad (2.124)$$

Ou, reescrevendo a equação (2.124):

$$\Gamma_{ij}^{NN'} = \mu_0 Q_{ip} H_p B_q Q_{qj} . \quad (2.125)$$

Portanto:

$$\mathbf{\Gamma}^{NN'} = \mathbf{Q} \cdot \mathbf{\Gamma}^{NN} \cdot \mathbf{Q}^T . \quad (2.126)$$

Assim o tensor de tensões proposto obedece à condição de indiferença material do formalismo constitutivo. A equação do movimento (2.101) com esse novo tensor de tensões se torna:

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} \right) = -\nabla P + \eta \nabla^2 \mathbf{u} + \mu_0 \mathbf{M} \cdot \nabla \mathbf{H} + \mu_0 \nabla \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}) . \quad (2.127)$$

Na equação (2.127) é observado que existe sobre o movimento do fluido uma contribuição devido a variação do campo magnético  $\mathbf{H}$  e uma contribuição devido o desalinhamento entre  $\mathbf{M}$  e  $\mathbf{H}$ . Assim esse último tensor de tensões magnético dado pela equação (2.121) é completo e será usado neste trabalho. Vale ressaltar que o tensor  $\mathbf{HB}$  pode ser escrito como a soma de um tensor simétrico e um tensor assimétrico:

$$\mathbf{HB} = \frac{1}{2} (\mathbf{HB} + \mathbf{BH}) + \frac{1}{2} (\mathbf{HB} - \mathbf{BH}) = \frac{1}{2} (\mathbf{HB} + \mathbf{BH}) + \frac{1}{2} \mu_0 (\mathbf{HM} - \mathbf{MH}) . \quad (2.128)$$

O divergente da parte simétrica está associada com o termo  $\mu_0 \mathbf{M} \cdot \nabla \mathbf{H}$  e o divergente da parte assimétrica com o termo  $\mu_0 \nabla \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H})$  da equação de balanço (2.127), mostrando ser esse um tensor mais geral. Assim, a parte simétrica deve ser usada quando há somente variação de campo  $\mathbf{H}$  e são desconsiderados torques internos, enquanto a parte assimétrica deve ser usada quando são considerados apenas torques internos. Para o caso mais geral use-se o tensor em sua forma completa  $\mathbf{HB}$ . Nota-se, ainda, que a parte assimétrica coincide com o tensor dado pela equação (2.119), obtido a partir do balanço de torques internos com campos magnéticos constantes, mostrando concordância entre os resultados.

#### 2.4.4 Viscosidade Rotacional

Seja o cisalhamento simples descrito pela figura (2.4). O campo de velocidade é dado por  $\mathbf{u} = (\dot{\gamma} x_2, 0, 0)$ , em que  $\dot{\gamma}$  é a taxa de cisalhamento. Um campo magnético constante  $\mathbf{H}$  é aplicado na direção  $\mathbf{e}_2$ , ou seja,  $\mathbf{H} = (0, H, 0)$ . A magnetização é dada por:  $\mathbf{M} =$

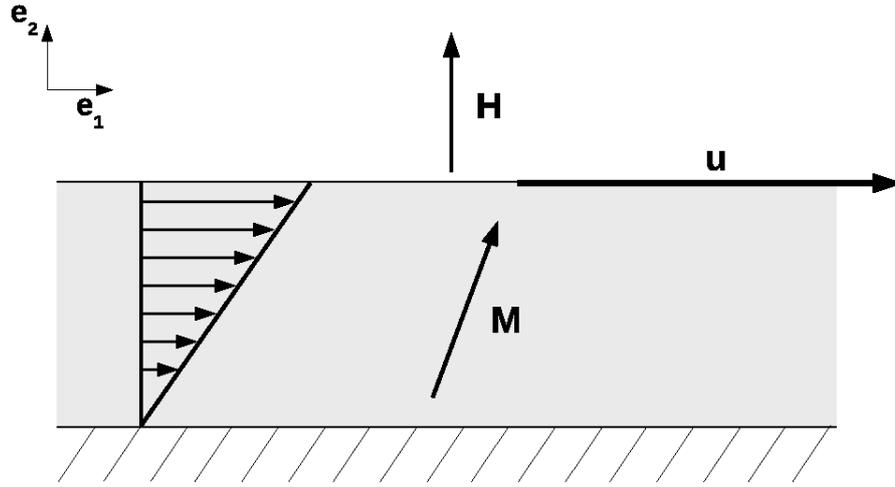


Figura 2.4: Esquema de cisalhamento simples com campo magnético transversal.

$(M_1, M_2, 0)$ . O desalinhamento entre  $\mathbf{M}$  e  $\mathbf{H}$  é responsável pelo torque interno, o que não ocorre em equilíbrio. Como o campo é constante, é utilizada a parte assimétrica do tensor de tensões dado pela equação (2.128). Assim, o tensor de tensões escrito em termos de suas componentes se torna:

$$\Sigma_{ij} = -P \delta_{ij} + \eta \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) + \frac{1}{2} \mu_0 (H_i M_j - M_i H_j) . \quad (2.129)$$

A componente de cisalhamento é dada por:

$$\Sigma_{21} = \eta \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_2} + \frac{\partial u_2}{\partial x_1} \right) + \frac{1}{2} \mu_0 (H_2 M_1 - M_2 H_1) . \quad (2.130)$$

Mas  $H_1 = 0$  e  $H_2 = H$ . Assim:

$$\Sigma_{21} = \eta \dot{\gamma} + \frac{1}{2} \mu_0 M_1 H . \quad (2.131)$$

Em um fluido newtoniano apenas o primeiro termo do lado direito da equação (2.131) está presente. Esta equação pode ser reescrita como:

$$\Sigma_{21} = \dot{\gamma} (\eta + \eta_r) , \quad (2.132)$$

com

$$\eta_r = \mu_0 \frac{M_1 H}{2 \dot{\gamma}} . \quad (2.133)$$

Então  $\eta_r$  representa um aumento na viscosidade causado pelo torque interno devido o campo magnético. Essa viscosidade é denominada *viscosidade rotacional*, e está diretamente relacionada à parte antissimétrica do tensor de tensões. Nota-se na equação (2.133) que essa viscosidade é diretamente proporcional à componente da magnetização perpendicular ao campo magnético aplicado. Modelos para calcular essa viscosidade extra analiticamente são apresentados no capítulo 3, juntamente com modelos para a magnetização de equilíbrio. Essa viscosidade é determinada também numericamente com simulação de fluidos magnéticos em cisalhamento simples e são feitas comparações entre os resultados analíticos e numéricos.

## 2.5 RELAXAÇÃO MAGNÉTICA

Vale ressaltar aqui quando deve ser usada a equação (2.110), sem torque interno, para definir a parte não-newtoniana  $\mathbf{\Gamma}^{NN}$  do tensor de tensões  $\mathbf{\Sigma}$  e quando deve ser usada a equação (2.121), desenvolvida a partir da consideração de que há um torque interno presente no fluido. Existem dois mecanismos para a relaxação magnética [2]. No primeiro o vetor de momento de dipolo magnético gira livremente. No segundo mecanismo, esse vetor está preso à partícula, fazendo com que esta também gire quando o vetor gira. Para o primeiro caso, o tempo característico é dado pelo tempo de relaxação magnética de Néel [48]:

$$\tau_N = \tau_o \exp\left(\frac{K_s v_p}{kT}\right), \quad (2.134)$$

em que  $\tau_o$  é um tempo característico tendo valor aproximado de  $10^{-9}s$ ,  $K_s$  é a constante anisotrópica do material e  $v_p = \pi\sigma^3/6$  é o volume da partícula sólida, sendo  $\sigma$  o seu diâmetro. O tempo característico para o segundo mecanismo é o tempo de relaxação browniano (ver seção 2.3) dado por [45]:

$$\tau_B = \frac{\sigma^2}{D_0^t} = \frac{3\pi\eta\sigma^3}{kT}, \quad (2.135)$$

que  $D_0^t$  é o coeficiente de difusão browniano de Stokes-Einstein. Portanto, quando  $\tau_N \ll \tau_B$ , o vetor momento de dipolo gira livremente e a equação (2.110) deve ser usada, caracterizando o comportamento superparamagnético do fluido. Já quando  $\tau_B \ll \tau_N$ , esse vetor está preso à partícula e agora a equação (2.119) se faz necessária. Nota-se que  $\tau_N$  cresce exponencialmente com o volume, enquanto  $\tau_B$  tem dependência linear. Para partículas com diâmetro da ordem de  $1\text{ nm}$ ,  $\tau_N \ll \tau_B$ , mas a medida que o volume das partículas aumenta  $\tau_B$  passa a ser menor que  $\tau_N$ . Para partículas esféricas de magnetita em querosene,

por exemplo, partículas com até  $10\text{ nm}$  de diâmetro possuem um vetor momento de dipolo que gira livremente. No entanto em partículas com diâmetros maiores que  $10\text{ nm}$  o vetor momento de dipolo é considerado fixo com relação à partícula. Nas simulações numéricas desenvolvidas neste trabalho é considerada a situação em que o vetor está preso à partícula. Já na parte experimental, como o diâmetro não é uniforme, algumas partículas poderão ter seus momentos livres para girar, mas a maioria tem o momento fixo na partícula.

## 2.6 PARÂMETROS ADIMENSIONAIS

Quantidades físicas como o campo magnético aplicado  $\mathbf{H}$  e uma velocidade característica do escoamento  $u_c$  ditam o comportamento do fluido. Para relacionar essas quantidades são utilizados parâmetros adimensionais, desenvolvidos nesta seção.

As partículas magnéticas (nanométricas) imersas no fluido estão sujeitas ao movimento browniano causado pelas interações com as moléculas do fluido. Um tempo de difusão browniana característico  $\tau_B$  é dado pela equação (2.135). Considerando o movimento do fluido, um tempo característico é dado por  $\tau_c = \sigma/u_c$ , em que  $\sigma$ , o diâmetro da partícula magnética, é usado como escala típica para comprimento e  $u_c$  é uma velocidade característica do escoamento. Como neste trabalho o movimento é sempre um cisalhamento simples, temos que  $u_c = \sigma\dot{\gamma}$ . A razão entre o tempo de difusão browniana e o tempo relacionado ao escoamento é definida como número de Péclet  $Pe$ . Assim:

$$Pe = \frac{\tau_B}{\tau_c} = \frac{3\pi\eta\dot{\gamma}\sigma^3}{kT} . \quad (2.136)$$

Quando  $Pe \ll 1$  a resposta das partículas às flutuações brownianas é mais rápida que a resposta ao cisalhamento e, portanto, o movimento browniano domina. Já no caso em que  $Pe \gg 1$  o oposto ocorre. Nas situações em que  $Pe \sim 1$  os dois movimentos são relevantes.

O número de Stokes  $St$  é aqui definido como a razão entre o tempo de relaxação inercial da partícula e o tempo de relaxação do escoamento:

$$St = \frac{\tau_i}{\tau_c} = \frac{\sigma^2\rho_p}{18\eta}\dot{\gamma} = \frac{\rho_p\dot{\gamma}\sigma^2}{18\eta} . \quad (2.137)$$

Aqui  $\rho_p$  é a massa específica da partícula. Analogamente, o número de Reynolds de partícula  $Re_p$  é definido como:

$$Re_p = \frac{\rho\dot{\gamma}\sigma^2}{18\eta} . \quad (2.138)$$

O número de Reynolds determina a razão entre o tempo de relaxação viscosa do fluido e o tempo de cisalhamento. Como  $St/Re_p = \rho_p/\rho \sim 1$  então  $Re_p$  e  $St$  são da mesma ordem. Além disso  $St \propto \sigma^2$  e as partículas possuem diâmetro nanométrico, então  $St \ll 1$  para todas as situações exploradas neste trabalho, assim como  $Re_p$ . Por exemplo, considerando valores típicos obtidos dos fluidos magnéticos estudados neste trabalho, como  $\sigma = 10\text{ nm}$ ,  $\eta = 0,1\text{ Pa.s}$ ,  $\rho_p = 5\text{ kg/m}^3$  e  $\dot{\gamma} = 100\text{ s}^{-1}$ , resulta  $St \sim 10^{-14}$ . Assim o tempo de relaxação de inércia da partícula é muito menor que um tempo característico do escoamento. A relação

$$\frac{St}{Pe} = \frac{\rho_p kT}{54\pi\eta^2\sigma} \quad (2.139)$$

dá a razão entre o tempo de relaxação inercial e o tempo de relaxação Browniano. Para os valores típicos deste trabalho resulta  $St/Pe \sim 10^{-12}$ . Ou seja, o tempo de relaxação inercial da partícula é muito menor que o tempo Browniano. Portanto o intervalo de tempo que uma partícula leva para alcançar sua velocidade final tanto devido ao escoamento quanto aos movimentos aleatórios brownianos é muito pequeno. Esse fato será considerado para que a inércia da partícula seja desprezada nas simulações numéricas.

Uma escala típica para a força de interação magnética entre a partícula e o campo é obtida a partir da equação (2.36):

$$F^h \sim \frac{\mu_0 m H}{\sigma}, \quad (2.140)$$

em que  $m$  é o módulo do vetor momento de dipolo das partículas magnéticas e  $H$  é o módulo do campo magnético aplicado. Uma escala de força browniana é dada por  $F^b \sim kT/\sigma$ . O parâmetro  $\alpha$  é definido como a razão da força de interação partícula-campo e da força browniana :

$$\alpha = \frac{\mu_0 m H}{kT}. \quad (2.141)$$

Assim  $\alpha$  relaciona o efeito do campo magnético e o efeito do movimento browniano. O parâmetro  $\alpha$  pode ser interpretado também como um campo  $H$  adimensional. Para a força de interação partícula-partícula uma escala típica é obtida a partir da equação (2.56):

$$F^d \sim \frac{\mu_0 m^2}{4\pi\sigma^4}. \quad (2.142)$$

A razão entre essa força de interação partícula-partícula e a força browniana define o parâmetro  $\lambda$ :

Tabela 2.1: Parâmetros Adimensionais

PARÂMETRO ADIMENSIONAL	EXPRESSÃO	FAIXA DE VARIAÇÃO
Fração Volumétrica de Partículas $\phi$	$\frac{N\pi\sigma^3}{6V}$	0 – 0,15
Interação Campo-Partícula $\alpha$	$\frac{\mu_0 m H}{kT}$	0 – 15
Interação Partícula-Partícula $\lambda$	$\frac{\mu_0 m^2}{4\pi k T \sigma^3}$	0 – 4
Número de Péclet $Pe$	$\frac{3\pi\eta\dot{\gamma}\sigma^3}{kT}$	0 – 30
Número de Stokes $St$	$\frac{\rho_p \dot{\gamma} \sigma^2}{18\eta}$	$\ll 1$

$$\lambda = \frac{\mu_0 m^2}{4\pi k T \sigma^3} . \quad (2.143)$$

Uma interpretação física do efeito de  $\lambda$  no comportamento da suspensão magnética é dada no capítulo 3. A razão entre os parâmetros  $\alpha$  e  $Pe$  resulta:

$$\frac{\alpha}{Pe} = \frac{\mu_0 m H}{3\pi\eta\dot{\gamma}\sigma^3} . \quad (2.144)$$

Esse termo expressa a razão entre a força de interação campo-partícula e uma força do escoamento. Assim quando  $\alpha/Pe \ll 1$  o campo deixa de ser importante, mesmo para valores expressivos de  $\alpha$ .

Este trabalho explora situações em que os parâmetros  $\alpha$ ,  $\lambda$  e  $Pe$  são da ordem da unidade, pois assim as forças relacionadas interagem com semelhante importância no fluido levando a comportamentos diferentes daqueles observados quando há a dominância pura de uma só força. A tabela (2.1) lista os parâmetros adimensionais que serão utilizados neste trabalho juntamente com a faixa de variação de cada um desses parâmetros. A tabela inclui também a fração volumétrica de partículas  $\phi$ , dada por:

$$\phi = \frac{N\pi\sigma^3}{6V} , \quad (2.145)$$

em que  $N$  é o número de partículas e  $V$  é o volume total de fluido magnético.

# Capítulo 3

## Modelos Analíticos de Magnetização

Neste capítulo são apresentados modelos analíticos de magnetização utilizados para a comparação com os resultados numéricos e experimentais. Primeiramente são apresentados os modelos de Langevin [2] e Ivanov-Kuznetsova [3] para a magnetização de equilíbrio. Depois são apresentadas as equações evolutivas da magnetização de Shliomis [28] e de Martsenyuk [5] e é apresentada também uma equação, proposta por Cunha [29], de evolução da magnetização com termos associados com variação da magnetização por efeitos hidrodinâmicos como deformação e vorticidade, além de transporte difusivo.

### 3.1 MAGNETIZAÇÃO DE EQUILÍBRIO

Quando não há campo magnético as partículas de um ferrofluido têm orientação aleatória, e a magnetização resultante é nula. No entanto, quando um campo é aplicado, a força de interação das partículas com o campo tende a orientar os momentos de dipolo na direção deste campo a medida em que a força magnética se torna maior que a força browniana. Para campos altos, esse alinhamento atinge seu máximo e há uma saturação da magnetização. Um modelo clássico adapta a função de Langevin para o fluido magnético. A magnetização de Langevin  $M_L$  é dada por [2] :

$$\frac{M_L}{M_s} = L(\alpha) = \coth(\alpha) - \frac{1}{\alpha} . \quad (3.1)$$

O parâmetro  $\alpha$  é definido na seção (2.6), equação (2.141). Esse parâmetro mede a importância relativa entre as forças magnéticas e brownianas na suspensão. Em (3.1)  $M_s$  é a magnetização de saturação e é dada por:

$$M_s = \phi M_d . \quad (3.2)$$

Na equação (3.2),  $\phi$  é a fração volumétrica de partículas e  $M_d = m/v_p$  é a magnetização do sólido. Esse modelo, aqui denominado modelo de Langevin, não considera interações magnéticas dipolo-dipolo. Assim o mesmo é válido para suspensões diluídas ( $\phi \sim 1\%$ ) em que o movimento de uma partícula é pouco influenciado pelas outras partículas em sua vizinhança.

Para levar em consideração as interações dipolares partícula-partícula, é considerado o modelo de magnetização de equilíbrio proposto por Ivanov e Kuznetsova [3]. Esse modelo parte da análise da função de correlação de pares para determinar a magnetização, podendo ser aplicado a suspensões semidiluídas ( $\phi \sim 10\%$ ). O modelo de Ivanov-Kuznetsova é dado por:

$$M = M_L \left[ 1 + \frac{1}{3} \frac{dM_L}{dH} + \frac{1}{2} \left( \frac{1}{3} \right)^2 M_L \frac{d^2 M_L}{dH^2} + \frac{1}{144} \left( \frac{dM_L}{dH} \right)^2 \right] , \quad (3.3)$$

em que  $M_L$  é a magnetização de Langevin. Desenvolvendo a equação (3.3) temos:

$$\frac{M}{M_s} = L(\alpha) + \phi \left[ \frac{4}{3} g(\alpha) \right] (6\lambda) + \phi^2 \left[ \frac{1}{2} \left( \frac{4}{3} \right)^2 h(\alpha) + \frac{(4)^2}{144} z(\alpha) \right] (36\lambda^2) \quad (3.4)$$

com

$$g(\alpha) = L(\alpha) \left( \frac{1}{\alpha^2} - \operatorname{cosech}^2(\alpha) \right) , \quad (3.5)$$

$$h(\alpha) = L^2(\alpha) \left( 2\operatorname{coth}(\alpha)\operatorname{cosech}^2(\alpha) - \frac{2}{\alpha^3} \right) e \quad (3.6)$$

$$z(\alpha) = g^2(\alpha)/L(\alpha) . \quad (3.7)$$

Em (3.4) o parâmetro  $\lambda$  é uma medida da força de interação magnética partícula-partícula ou dipolo-dipolo entre as partículas comparada com as forças brownianas, como definido na seção (2.6). A equação (3.4) pode ser reescrita em termos da magnetização do sólido ou total  $M_d$ . Assim:

$$\frac{M}{M_d} = \phi L(\alpha) + \phi^2 \left[ \frac{4}{3} g(\alpha) \right] (6\lambda) + \phi^3 \left[ \frac{1}{2} \left( \frac{4}{3} \right)^2 h(\alpha) + \frac{(4)^2}{144} z(\alpha) \right] (36\lambda^2) . \quad (3.8)$$

Nota-se que o modelo de Ivanov-Kuznetsova (3.4) recupera a função de Langevin (3.1) quando  $\lambda = 0$ , ou seja, quando não são consideradas interações magnéticas entre as partículas. A seguir são apresentados alguns resultados mostrando a dependência desses modelos com os parâmetros físicos identificados  $\alpha$ ,  $\lambda$  e  $\phi$ .

A figura (3.1) mostra a magnetização em função do parâmetro  $\alpha$  para diferentes  $\lambda$  com  $\phi = 0,05$ . Para campos pequenos ( $\alpha \ll 1$ ), as forças brownianas dominam as forças de interação campo-partícula e partícula-partícula. Nesse regime a interação das moléculas do fluido base definem o movimento das partículas magnéticas, que é puramente randômico. Isto resulta em valores muito baixos de magnetização e efeitos imperceptíveis das interações dipolares. No entanto, quando  $0,5 < \alpha < 10$  uma nítida discrepância entre as curvas aparece. Neste intervalo a interação entre as partículas é significativa, comparada às forças brownianas e a força magnética entre a partícula e o campo. Quando  $\alpha > 10$  a força de interação entre as partículas volta a ser desprezível, pois agora a interação das partículas com o campo magnético domina completamente o movimento das partículas na suspensão.

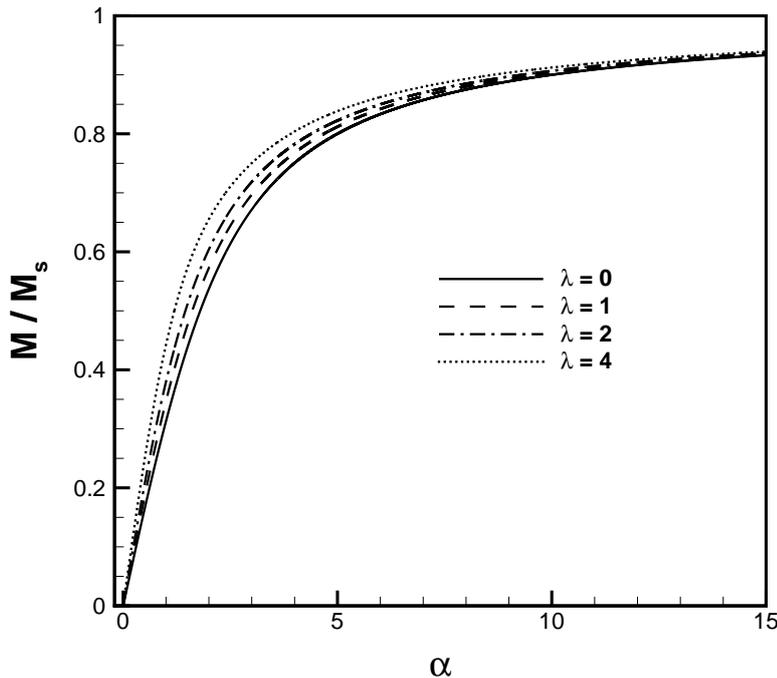


Figura 3.1: Magnetização em função de  $\alpha$  com  $\phi = 0,05$  para diferentes valores de  $\lambda$  usando o modelo de Ivanov-Kuznetsova [3], de acordo com a equação (3.8).

A figura (3.2) mostra a diferença entre a magnetização predita por Ivanov- Kuznetsova e por Langevin, para diferentes  $\lambda$ , enfatizando o que foi discutido neste parágrafo. Já que o modelo de Langevin não leva em conta interações magnéticas dipolares entre as partículas, a figura (3.2) mostra a contribuição na magnetização devido, apenas, a essas interações

isoladamente. Nas simulações numéricas de fluidos magnéticos desenvolvidas neste trabalho um dos principais pontos a ser investigado é a influência da interação entre as partículas no comportamento macroscópico da suspensão. Por isso a maioria dos resultados é mostrada para  $\alpha \sim 1$ , pois é nessa faixa de campo que a força de interação entre as partículas é mais pronunciada tendo em vista que o efeito de interação partícula-campo é moderado, sendo o tempo necessário para que o campo externo desloque uma partícula de uma distância  $\sigma$ , por exemplo, similar ao tempo necessário para que uma interação dipolar produza um deslocamento de uma distância  $\sigma$ .

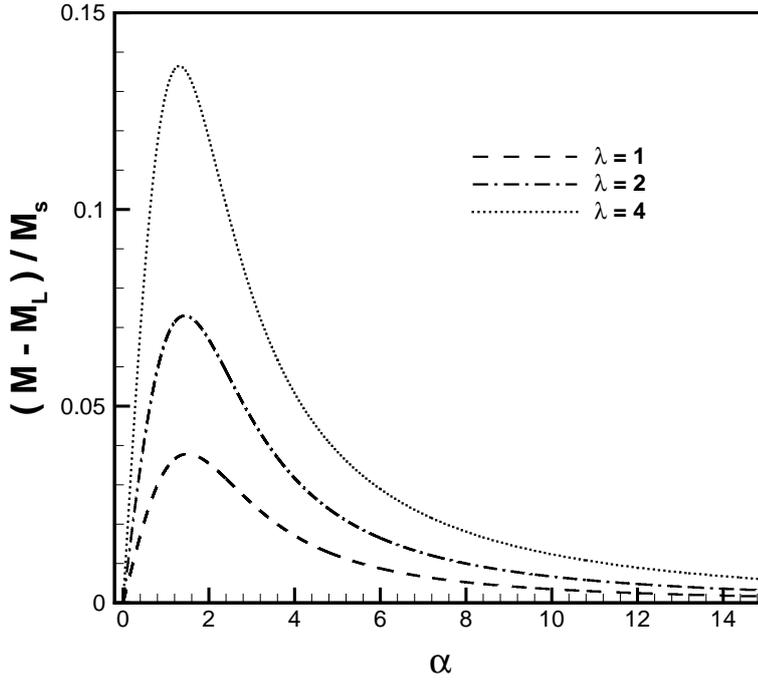


Figura 3.2: Diferença entre a magnetização de Ivanov-Kuznetsova [3] e a de Langevin [2] para diferentes  $\lambda$  em função de  $\alpha$  com  $\phi = 0,05$ .

As figuras (3.3) e (3.4) mostram a magnetização em função de  $\phi$  para diferentes  $\lambda$  com  $\alpha = 1$  e  $\alpha = 10$ , respectivamente. Nota-se que na figura (3.4) as curvas praticamente se sobrepõem, ou seja, para  $\alpha \gg 1$ , que corresponde a altos efeitos do campo sobre as partículas, as forças magnéticas dipolares de interação entre as partículas não são significativas em comparação com as forças de interação campo-partícula. Isto pode ser observado em todas as frações volumétricas, mesmo para  $\phi = 15\%$ . Na figura (3.3) é interessante notar que para  $\phi \sim 0,01$  a força de interação dipolar entre as partículas não é importante, mesmo no caso em que  $\lambda = 4$ . Isso acontece porque em suspensões diluídas as partículas estão separadas a distâncias suficientemente grandes, minimizando a interação entre as mesmas.

Outros exemplos de modelos para magnetização de equilíbrio utilizados na literatura

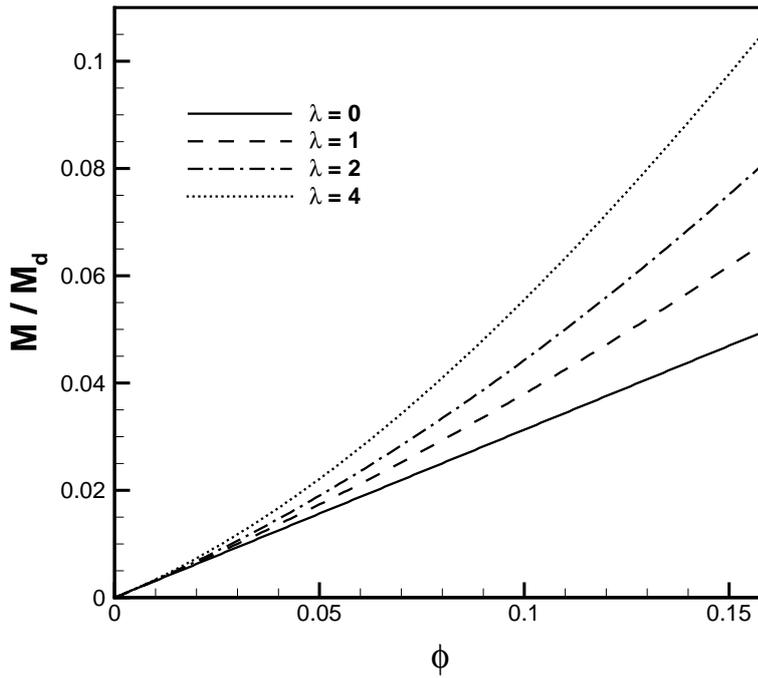


Figura 3.3: Magnetização em função da fração volumétrica  $\phi$  com  $\alpha = 1$  para diferentes valores de  $\lambda$  usando o modelo de Ivanov-Kuznetsova [3], de acordo com a equação (3.8).

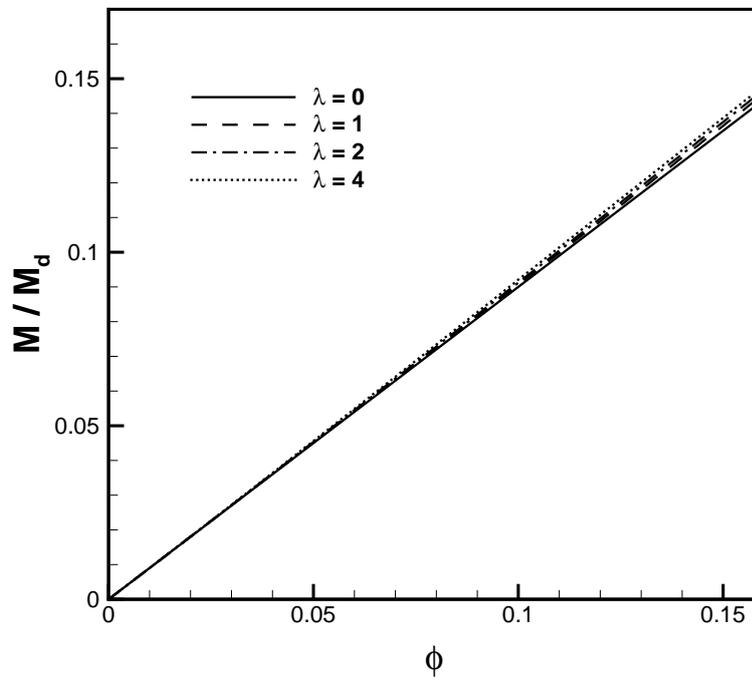


Figura 3.4: Magnetização em função da fração volumétrica  $\phi$  com  $\alpha = 10$  para diferentes valores de  $\lambda$  usando o modelo de Ivanov-Kuznetsova [3], de acordo com a equação (3.8).

e que incluem interações entre partículas são o modelo de campo modificado de primeira ordem [25, 26] e o modelo de Weiss [27]. Neste trabalho é usado o modelo de Ivanov-Kuznetsova pois esse apresenta boa concordância com resultados numéricos e experimentais mesmo para suspensões mais concentradas (  $\phi \approx 0.2$  ) [49] .

## 3.2 EQUAÇÃO EVOLUTIVA

Quando há cisalhamento, ou efeitos hidrodinâmicos, a magnetização se desvia do seu valor de equilíbrio. Assim, é necessária uma equação constitutiva evolutiva de fechamento para que a magnetização fora do equilíbrio seja determinada e propriedades como a viscosidade rotacional, equação (2.133), possam ser calculadas. Um modelo fenomenológico proposto por Shliomis que parte da equação de relaxação de Debye é dado por [28]:

$$\frac{D\mathbf{M}}{Dt} = \boldsymbol{\Omega} \times \mathbf{M} - \frac{1}{\tau} (\mathbf{M} - \mathbf{M}_0) - \frac{1}{6\eta\phi} \mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}) , \quad (3.9)$$

em que

$$\boldsymbol{\Omega} = \frac{1}{2} \nabla \times \mathbf{u} \quad (3.10)$$

é a velocidade angular e  $\mathbf{M}_0$  é a magnetização de equilíbrio. O tempo de relaxação magnético  $\tau$  é dado por:

$$\tau = \frac{\tau_B \tau_N}{\tau_B + \tau_N} . \quad (3.11)$$

Quando o diâmetro da partícula magnética é suficientemente grande para que o vetor momento de dipolo esteja preso à mesma ( ver seção 2.5) temos  $\tau_B \ll \tau_N$  e, conseqüentemente  $\tau \simeq \tau_B$ . Usando como magnetização de equilíbrio a função de Langevin, a viscosidade rotacional predita pelo modelo de Shliomis é dada por:

$$\eta_r = \frac{3}{2} \eta\phi \frac{\zeta^2 L(\alpha)}{2\alpha + \zeta^2 L(\alpha)} , \quad (3.12)$$

com

$$\sqrt{\alpha^2 - \zeta^2} = \frac{1}{6} \frac{Pe \alpha \zeta}{2\alpha + \zeta^2 L(\alpha)} . \quad (3.13)$$

Nas equações (3.12) e (3.13)  $\zeta$  é o módulo do vetor  $\boldsymbol{\zeta}$ , em que:

$$\mathbf{M} = M_0 \frac{\boldsymbol{\zeta}}{\alpha} . \quad (3.14)$$

Essa variável foi introduzida para resolver a equação (3.9). Esse modelo é válido para baixas vorticidades, ou seja, é válido para situações em que o tempo de relaxação browniano é menor que um tempo característico do escoamento. Na situação em que  $Pe \ll 1$ , a equação (3.12) torna-se:

$$\eta_r = \frac{3}{2} \eta \phi \frac{\alpha L(\alpha)}{2 + \alpha L(\alpha)} . \quad (3.15)$$

Nas simulações numéricas desenvolvidas neste trabalho são analisadas também situações em que  $Pe \gg 1$ . Assim é apresentado agora um modelo de equação evolutiva da magnetização que pode ser usado nessas condições [50]. O modelo de Martsenyuk [5] foi derivado microscopicamente das equações de Fokker-Planck e é dado por:

$$\frac{D\mathbf{M}}{Dt} = \boldsymbol{\Omega} \times \mathbf{M} - \frac{[\xi^2 - (\boldsymbol{\xi} \cdot \boldsymbol{\alpha})]}{\tau \xi^2} \mathbf{M} - \frac{[\xi - L(\xi)]}{6\eta\phi\xi L^2(\xi)} \mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}) . \quad (3.16)$$

A ideia aqui é que a magnetização  $\mathbf{M}$  seja consequência de um campo efetivo local  $\mathbf{H}_e$  diferente do campo aplicado  $\mathbf{H}$ . Assim:

$$\mathbf{M} = M_s L(\xi) \frac{\boldsymbol{\xi}}{\xi} , \quad (3.17)$$

em que

$$\boldsymbol{\xi} = \frac{\mu_0 m \mathbf{H}_e}{kT} . \quad (3.18)$$

Assim a magnetização é determinada implicitamente pelas equações (3.16) e (3.17). Na equação (3.16),  $\boldsymbol{\alpha}$  é o vetor campo magnético adimensional:

$$\boldsymbol{\alpha} = \frac{\mu_0 m \mathbf{H}}{kT} . \quad (3.19)$$

Com o modelo de Martsenyuk, temos:

$$\eta_r = \frac{3}{2} \eta \phi \frac{\xi L^2(\xi)}{\xi - L(\xi)} , \quad (3.20)$$

com  $\xi$  dado implicitamente por:

$$\sqrt{\alpha^2 - \xi^2} = \frac{1}{6} \frac{Pe \xi L(\xi)}{\xi - L(\xi)} . \quad (3.21)$$

Quando o diâmetro da partícula magnética é pequeno o suficiente para que o vetor momento de dipolo esteja livre para girar, o tempo de relaxação magnético  $\tau$  se aproxima de  $\tau_N$  e se torna muito pequeno, saindo do limite da caracterização contínua. Esse problema não está presente na equação de evolução da magnetização proposta recentemente por Cunha [29]:

$$\frac{D\mathbf{M}}{Dt} = \mathbf{D} \cdot \mathbf{M} + \frac{1}{2} \mathbf{M} \times (\nabla \times \mathbf{u} + \boldsymbol{\omega}) + \frac{1}{\mu \kappa_f} \nabla^2 \mathbf{M} + \frac{1}{\tau} (\mathbf{M} - \mathbf{M}_0) , \quad (3.22)$$

em que  $\kappa_f$  é a condutividade elétrica do fluido em movimento e  $\tau$  é um tempo característico da ordem do tempo de escoamento. A equação (3.22) é deduzida diretamente das equações de Maxwell e mostra que, além dos efeitos hidrodinâmicos, o efeito de deformação das partículas fluidas devido o escoamento afeta a magnetização da suspensão magnética, além da difusão de magnetização por  $\nabla^2 \mathbf{M}$  no fluido, com  $1/\mu \kappa_f$  sendo o coeficiente de difusão. A equação (3.22) é acoplada à equação de variação do momento angular pelo termo  $\boldsymbol{\omega}$ .

# Capítulo 4

## Experimento

Neste capítulo é discutido o aparato experimental referente ao reômetro de placas paralelas. Em seguida, são apresentados e descritos os equipamentos e a metodologia utilizados para a realização dos experimentos no Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia do Departamento de Engenharia Mecânica da Universidade de Brasília.

### 4.1 ESCOAMENTO ENTRE PLACAS PARALELAS

O reômetro utilizado na caracterização reológica dos fluidos magnéticos foi um reômetro de placa plana e disco rotativo, ou reômetro de placas paralelas. Nesta seção é descrito o funcionamento do referido equipamento. A figura (4.1) mostra um esquema de funcionamento. O cisalhamento da lâmina fluida que está entre o disco e a placa, no espaço  $\delta$ , ocorre em regime permanente e é causado pela rotação com velocidade angular  $\Omega$  do disco. Este possui raio  $R$  e seu plano é perpendicular à direção  $z$ , sendo essa a direção da aceleração gravitacional local. O campo magnético, quando aplicado, também está alinhado com a direção  $z$ , em sentido oposto ao da aceleração gravitacional.

Para a descrição do problema serão usadas coordenadas cilíndricas. O campo de velocidade depende de  $r$  e  $z$ :

$$\mathbf{u} = u_{\theta}(r, z) \mathbf{e}_{\theta} . \quad (4.1)$$

Para que a velocidade seja unidirecional (tenha apenas componente na direção  $\mathbf{e}_{\theta}$ ), como na equação (4.1), é necessário que a condição

$$Re \left( \frac{\delta}{R} \right)^2 \ll 1 \quad (4.2)$$

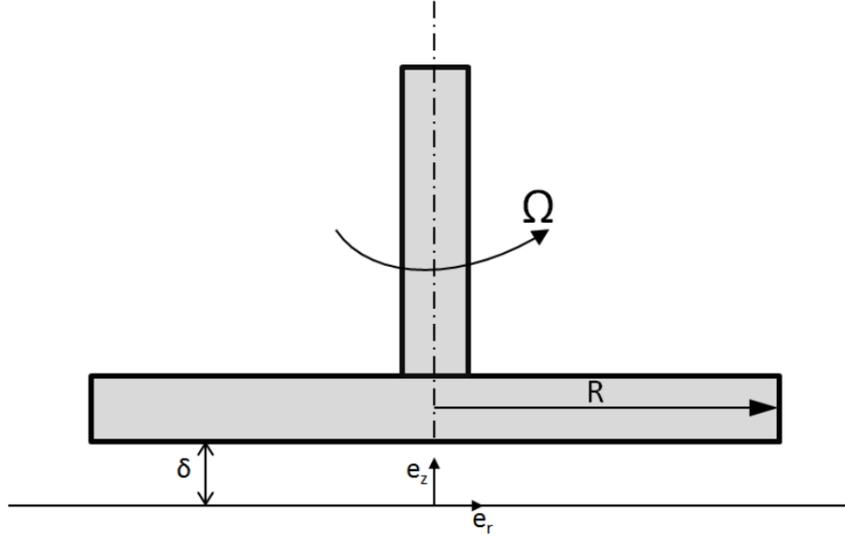


Figura 4.1: Esquema de funcionamento do reômetro de placas paralelas. O disco de raio  $R$  gira sobre a placa. O fluido reside no espaçamento de comprimento  $\delta$  entre o disco e a placa. A direção  $\theta$  é perpendicular à página.

seja respeitada. Aqui  $Re = \rho\Omega R^2/\eta$  é o número de Reynolds do escoamento. Nos experimentos  $\delta \sim 0,1\text{ mm}$  e  $R \sim 10\text{ mm}$ , assim  $(\delta/R) \sim 10^{-2}$ . Portanto a condição de unidirecionalidade é sempre garantida mesmo para valores altos de  $\Omega$ . As equações de Navier-Stokes em coordenadas cilíndricas e com a velocidade dada por (4.1) tomam a forma:

componente r:

$$-\frac{\rho u_\theta^2}{r} = -\frac{\partial p}{\partial r} \quad (4.3)$$

componente  $\theta$ :

$$0 = -\frac{1}{r} \frac{\partial p}{\partial \theta} + \eta \frac{\partial^2 u_\theta}{\partial z^2} \quad (4.4)$$

componente z:

$$0 = -\frac{\partial p}{\partial z} + \rho g. \quad (4.5)$$

Integrando a equação (4.3) em relação a  $r$  temos:

$$p = \int \rho \frac{u_\theta^2(r, z)}{r} dr + h(\theta, z). \quad (4.6)$$

Substituindo na equação (4.4), resulta:

$$\frac{\partial h}{\partial \theta} = r\eta \left( \frac{\partial^2 u_\theta}{\partial z^2} \right). \quad (4.7)$$

Mas devido a simetria do escoamento,  $h$  deve depender apenas de  $z$ , o que leva a:

$$\frac{\partial^2 u_\theta}{\partial z^2} = 0 . \quad (4.8)$$

As condições de contorno da equação (4.8) são:

$$u_\theta(r, 0) = 0 \quad e \quad u_\theta(r, \delta) = \Omega r , \quad (4.9)$$

devido à condição de não escorregamento. O perfil de velocidade é dado então por:

$$u_\theta(r, z) = \frac{\Omega r z}{\delta} . \quad (4.10)$$

A tensão de cisalhamento no plano perpendicular a  $\mathbf{e}_z$  na direção  $\theta$  é dada por:

$$\sigma_{z\theta}(r, z) = \eta \left( \frac{1}{r} \frac{\partial u_z}{\partial \theta} + \frac{\partial u_\theta}{\partial z} \right) . \quad (4.11)$$

Substituindo a equação (4.10) na equação (4.11), obtém-se a expressão para a tensão de cisalhamento na superfície do disco rotativo:

$$\sigma_{z\theta}(r, \delta) = \eta \frac{\Omega r}{\delta} . \quad (4.12)$$

A força exercida no disco é dada pelo produto da tensão de cisalhamento que ali atua pela área do disco, ou seja:

$$dF_\theta = \sigma_{z\theta}(r, \delta) dA = \eta \frac{\Omega r}{\delta} 2\pi r dr . \quad (4.13)$$

Como a força varia ao longo de  $r$ , a obtenção do torque  $L$  sobre o disco é feita por integração ao longo do raio:

$$L = \int_0^R r dF_\theta . \quad (4.14)$$

Substituindo a equação (4.13) em (4.14), temos:

$$L = \int_0^R r \eta \frac{\Omega r}{\delta} 2\pi r dr , \quad (4.15)$$

o que resulta em:

$$L = \frac{\eta\pi\Omega R^4}{2\delta}. \quad (4.16)$$

A expressão dada pela equação (4.16) indica como a viscosidade de um fluido pode ser obtida pela medição do torque atuando em um disco. Apesar de ter sido desenvolvida para fluido newtoniano, é possível medir a viscosidade aparente de qualquer fluido utilizando um instrumento que funcione de acordo com esta configuração. Uma vantagem importante que o escoamento entre disco e placa plana possui é a possibilidade de controle do tamanho do espaçamento  $\delta$ , sendo mais uma maneira de se garantir a unidirecionalidade do escoamento e uma taxa de cisalhamento constante devido a linearidade do perfil de velocidade na direção  $z$ .

## 4.2 APARATO EXPERIMENTAL

O reômetro modelo MCR 301 da marca Anton Paar (figura 4.2) tem como princípio de funcionamento o escoamento entre disco rotativo (com diâmetro de 50 mm) e placa plana, decrito na seção (4.1). Um equipamento moderno que possibilita uma precisa caracterização reológica de uma ampla gama de fluidos complexos, inclusive fluidos com fortes características viscoelásticas. O torque mínimo é de  $0,1 \mu Nm$  e o torque máximo permitido é de  $200 mNm$ . A acurácia é de  $0,2 \mu Nm$  ou de  $0,5\%$  do valor torque, o que for maior em termos absolutos. Com este reômetro é possível realizar medições com taxa de cisalhamento constante ou variável, e ainda é possível realizar cisalhamentos oscilatórios e medições de diferenças de tensões normais.

Para o funcionamento do reômetro é necessário um sistema de ar comprimido para realizar a lubrificação em seu mecanismo de rotação, tornando mínimo o atrito entre o mancal e o eixo do motor. O sistema de compressão é composto por um compressor médico odontológico modelo MSV 6 da marca Shulz. Esse compressor fornece ar a uma pressão média de 6 bar ao reômetro. Para garantir que a pureza e a umidade do ar fornecido estejam de acordo com o exigido pelo fabricante é utilizado um conjunto de filtros da marca Beko Clearpoint, como pode ser visto na figura (4.3).

O controle da temperatura do fluido na medição é realizado deixando toda a placa na temperatura desejada, por meio de um sistema Peltier em conjunto com um banho térmico da marca Lauda (figura 4.4). A temperatura do próprio ambiente do laboratório é controlada por meio de um sistema de condicionamento de ar. A programação do experimento é feita por meio do *software* Rheoplus, que permite a escolha prévia de variáveis como o tamanho do espaçamento  $\delta$  e a rotação, além da opção de poder escolher entre escoamento



Figura 4.2: Reômetro MCR 301 da marca Anton Paar, que funciona baseado no princípio de escoamento entre disco rotativo e placa plana. (Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia - ENM - UnB)

com taxa de cisalhamento constante, variável, oscilatória, dentre outras opções. O reômetro também é apoiado sobre bancada rígida, para evitar que vibrações indesejadas afetem os resultados.

Para medidas de viscosidade no reômetro MRC 301 sob a influência de campos magnéticos é necessário o acoplamento ao mesmo de um dispositivo magnetoreológico (célula magnética), também da marca Anton Paar, modelo MRD 70/1T. Esse equipamento, através de uma fonte que produz correntes de até  $5\text{ A}$ , pode gerar campos induzidos da ordem de  $1\text{ T}$ . Um outro disco rotativo, com  $20\text{ mm}$  de diâmetro, deve ser acoplado em substituição ao original, de  $50\text{ mm}$ . A cavidade onde se encontra a amostra é isolada por uma cápsula de blindagem magnética e térmica, para que a temperatura seja mantida homogênea. A figura (4.5) mostra os componentes da célula magnética.

A programação do experimento com campo magnético também é feita pelo programa Rheoplus, impondo como variáveis de entrada o tempo de experimento, o tempo entre as tomadas de dados, a taxa de cisalhamento e a intensidade do campo magnético gerado, dentre outras. Após cada corrida experimental com o equipamento submetido a um campo magnético aplicado, deve-se realizar uma desmagnetização do aparato, para evitar que haja interferência em corridas experimentais subsequentes.



Figura 4.3: Filtros responsáveis pelo tratamento do ar que sai do compressor e se desloca até o reômetro MRC 301. (Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia - ENM - UnB)



Figura 4.4: Equipamento responsável pelo controle da temperatura do fluido em estudo. (Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia - ENM - UnB)

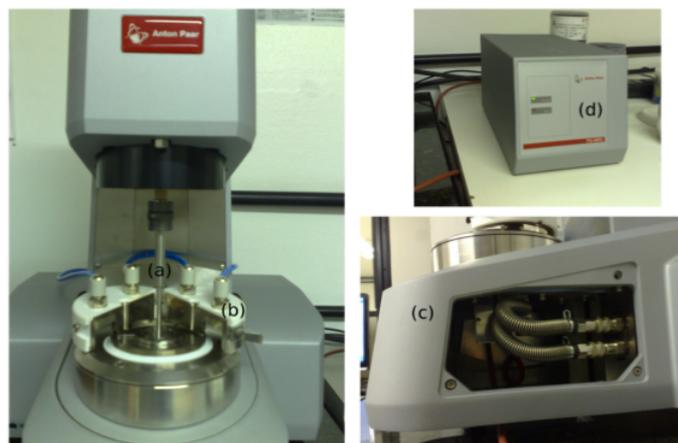


Figura 4.5: Célula magnética instalada no reômetro. (a) Disco rotativo. (b) Cápsula de blindagem desmontada. (c) Bobina do aparato magnetoreológico. (d) Fonte de corrente. (Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia - ENM - UnB)

Para a caracterização microestrutural dos fluidos magnéticos foi usado o microscópio ótico BX51 da Olympus, com uma associação de lentes para um aumento da ordem de 500 vezes. As imagens amplificadas pelo microscópio foram capturadas por uma câmera digital UC30 de 3.2 megapixels e enviadas a um computador. A figura (4.6) mostra o sistema de microscopia utilizado.



Figura 4.6: Microscópio ótico e câmera digital. (Laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia - ENM - UnB)

### 4.3 METODOLOGIA

Para as medições no reômetro MRC 301 primeiramente foi determinado o valor do espaçamento  $\delta$ . Após medições com diferentes valores foi escolhido  $\delta = 0,3\text{ mm}$  pois com esse valor havia uma convergência dos resultados. O volume de fluido necessário para preencher o espaçamento é então de  $0,38\text{ ml}$ . Uma pipeta é utilizada para colocar o fluido no reômetro. É esperado um período de tempo de aproximadamente 5 minutos para que a temperatura da amostra seja igualada à temperatura do reômetro. Depois de iniciado o experimento é necessário um intervalo de tempo para que a viscosidade entre em regime permanente. Os dados obtidos nesse intervalo não são utilizados no cálculo do resultado médio final. Todos os experimentos deste trabalho foram realizados a uma temperatura constante de  $25^\circ\text{ C}$ .

Foi realizado um teste de convergência da média para determinar quantas realizações  $N$  seriam necessárias para obter cada ponto experimental. A figura (4.7), referente ao óleo mineral puro a uma taxa de cisalhamento de  $100\text{ s}^{-1}$ , mostra que com 5 realizações experimentais já se observa uma convergência da média, sendo esse o valor utilizado em todos os experimentos seguintes. O valor da viscosidade do óleo mineral puro encontrado foi de  $\eta_o = 147,69 \pm 4,51\text{ cP}$ . O óleo mineral puro é usado como fluido base para suspensão de magnetita. A viscosidade do fluido base é utilizada para adimensionalizar os resultados obtidos para a suspensão magnética de magnetita.

A figura (4.8) mostra a viscosidade do óleo mineral em função da taxa de cisalhamento, mostrando o comportamento newtoniano do referido óleo. As linhas tracejadas representam um tolerância de  $\pm 1\%$  em relação ao valor médio.

Com a corrente elétrica ocorre um aquecimento da amostra devido o efeito Joule. Para examinar o efeito da corrente elétrica da fonte magnética e determinar o tempo limite para aplicação do campo, foi feito um estudo com o óleo mineral puro. A figura (4.9) mostra a viscosidade em função do tempo para uma taxa de cisalhamento de  $100\text{ s}^{-1}$  e com uma corrente elétrica de  $4\text{ A}$ , que corresponde à maior corrente utilizada neste trabalho. Uma corrente de  $4\text{ A}$  gera um campo magnético de  $196\text{ kA/m}$ . As linhas tracejadas representam uma tolerância de  $\pm 1\%$  em relação ao valor inicial. No encarte mostra-se o detalhe para os primeiros  $100\text{ s}$ . Nesse período de teste a viscosidade diminuiu cerca de  $1\%$  devido o aquecimento da amostra. Portanto foi determinado que  $100\text{ s}$  é o período de tempo máximo para os ensaios com campo aplicado, para que o aquecimento causado pela corrente não altere significativamente o comportamento da suspensão. Após  $500\text{ s}$  de teste verificou-se uma diminuição de  $12\%$  no valor da viscosidade causada pelo aumento da temperatura do aparato.

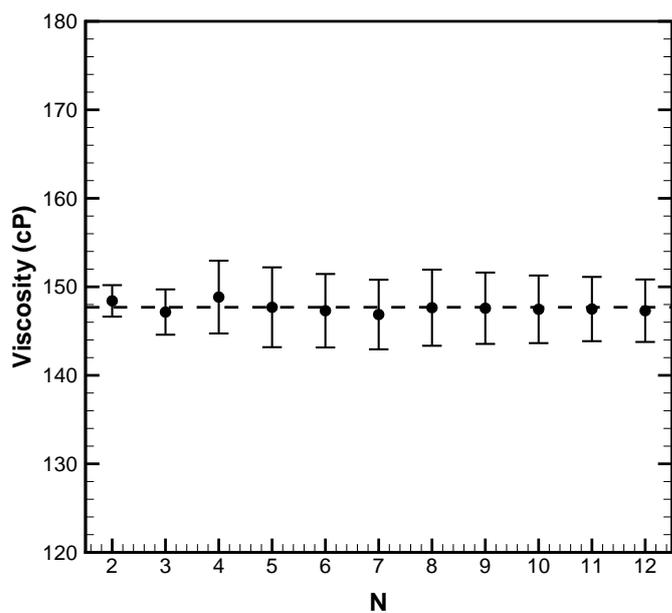


Figura 4.7: Viscosidade do óleo mineral em função do número de realizações, mostrando a convergência da média. A linha tracejada representa a viscosidade média obtida após 5 medidas (147,69 *cP*).

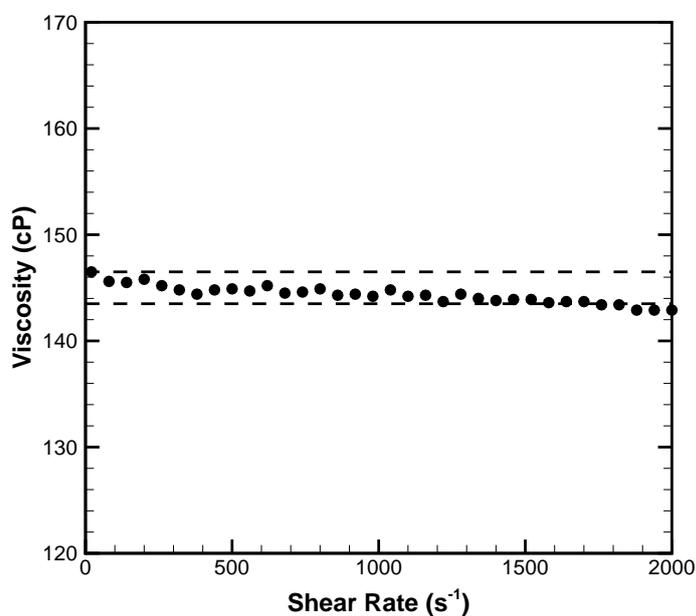


Figura 4.8: Viscosidade do óleo mineral em função da taxa de cisalhamento. Nota-se o comportamento newtoniano deste óleo. As linhas tracejadas representam uma tolerância de  $\pm 1\%$  em relação ao valor médio.

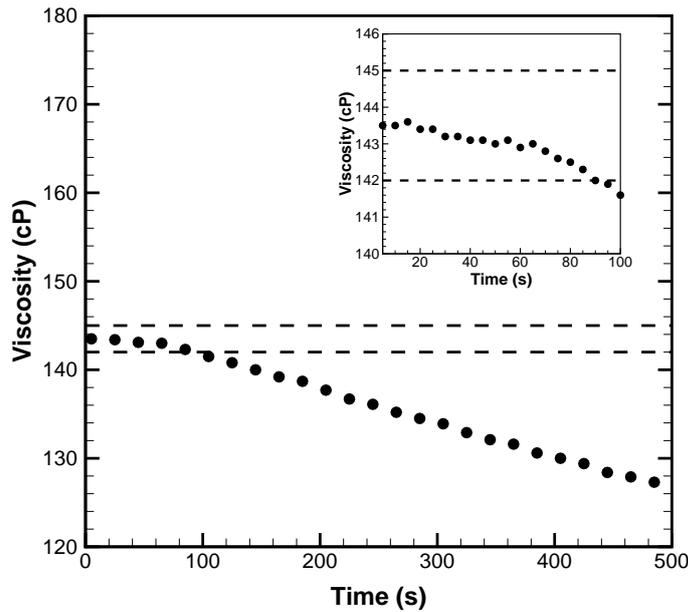


Figura 4.9: Estudo do efeito do aumento da temperatura devido a corrente elétrica no comportamento reológico do óleo mineral puro. O encarte mostra o detalhe para os 100 primeiros segundos de teste.

A figura (4.10) mostra como foram obtidos os pontos e as barras de erro dos resultados experimentais. São feitas 5 repetições para obter cada ponto. Para cada tempo é tomada uma média em cima das 5 realizações experimentais. O resultado final é obtido por meio de uma média dos pontos médios resultantes. O desvio padrão para o resultado final é escolhido como o valor máximo dentre os desvios padrão individuais para cada tempo. Para o cálculo da média e do desvio padrão finais é desconsiderado o intervalo de tempo em que a viscosidade apresenta comportamento transiente.

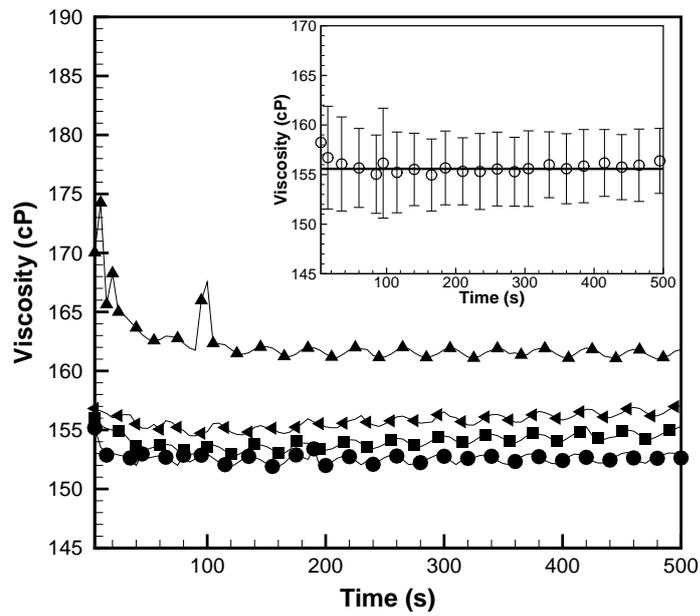


Figura 4.10: Viscosidade em função do tempo para  $\phi = 0,005$ ,  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$  e  $\alpha = 0$ . O gráfico principal mostra os dados obtidos a partir de 4 realizações experimentais. No encarte os pontos representam a média obtida em cada tempo, com seus respectivos desvios padrão, e a linha cheia representa a média final obtida.

# Capítulo 5

## Resultados Experimentais

Nesse capítulo são apresentadas características reológicas e microestruturais de uma suspensão de partículas de magnetita em óleo mineral e propriedades reológicas de um fluido magnético (o FCNS5AO) composto de nanopartículas de maghemita dispersas em óleo mineral naftênico. Os equipamentos utilizados para o estudo dos fluidos magnéticos apresentados neste capítulo são os descritos no capítulo 4. Todos os experimentos foram realizados a temperatura constante de  $25^{\circ} C$ .

### 5.1 SUSPENSÃO DE MAGNETITA EM ÓLEO MINERAL

A suspensão magnética investigada possui como fluido base um óleo mineral com massa específica de  $0,87 g/ml$ . As partículas de magnetita possuem massa específica de  $5,3 g/ml$  e um diâmetro médio de  $8 nm$ . As partículas foram sintetizadas no Laboratório de Química de Materiais do Instituto de Química da Universidade Federal de Goiás (UFG) [51] em colaboração com as pesquisas desenvolvidas pelo Grupo Vortex na área de reologia e hidrodinâmica de fluidos magnéticos.

#### 5.1.1 Reologia

A figura (5.1) mostra a viscosidade em função da fração volumétrica  $\phi$  para diferentes campos magnéticos aplicados com  $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$ . A viscosidade  $\eta$  é adimensionalizada pela viscosidade do óleo mineral puro  $\eta_o = 147,69 cP$ . O parâmetro  $\alpha$  é definido na seção (2.6). O campo magnético  $H$  é conhecido nos experimentos e varia no intervalo entre 0 e  $196 kA/m$ . A magnetização do sólido da magnetita é de  $M_d = 446 kA/m$  [2]. O momento

de dipolo  $m$  usado para calcular  $\alpha$  é obtido da relação:

$$m = M_d v_p \quad , \quad (5.1)$$

em que  $v_p$  é o volume da partícula. Como as partículas possuem um diâmetro médio de  $8 \text{ nm}$  [51], temos  $m = 1,20 \times 10^{-19} \text{ Am}^2$ . Assim, é definido o parâmetro  $\alpha$ , de acordo com a equação (2.141). Para essa suspensão o parâmetro de interação dipolar partícula-partícula vale  $\lambda = 0,68$ . Mostra-se na figura (5.1) o comportamento linear da viscosidade em função da fração volumétrica para o caso em que não há campo aplicado ( $\alpha = 0$ ). Nesta situação a suspensão se comporta como uma suspensão aproximadamente monodispersa em que alguns agregados já presentes em sua estrutura apresentam uma forma mais isotrópica e são distribuídos no espaço com uma distribuição de partículas próxima daquela estatisticamente homogênea. A suspensão nesse regime de baixa diluição se comporta no regime linear de Einstein com coeficiente  $O(\phi)$  diferente de  $5/2$  porque existem agregados, além de as partículas não serem perfeitamente esféricas. Existe uma heterogeneidade ou polidispersidade na suspensão devido a presença dos agregados iniciais.

Quando há campo aplicado essa linearidade não é mais recuperada devido a formação de um número maior de estruturas agregativas ou cadeias como consequência das interações magnéticas entre as partículas e, principalmente, a ação do campo externo sobre as partículas magnéticas. No entanto, nota-se que para baixas frações volumétricas de partículas as estruturas formadas mesmo produzindo valores de viscosidade acima dos equivalentes à condição sem campo ainda apresentam um comportamento linear até aproximadamente  $\phi = 0,5\%$  para o menor valor  $\alpha = 1,45$ . A partir daí temos a forte influência de termos de alta ordem em  $\phi$  e um regime não-linear associado com a drástica mudança microestrutural da suspensão na presença de campo, como a formação de cadeias anisotrópicas. A microestrutura é analisada em mais detalhes na seção (5.1.2).

Na figura (5.1) a viscosidade é um valor somado à unidade, já que a viscosidade é adimensionalizada pela viscosidade do fluido base. Esse valor acima da unidade é decorrente de três contribuições diferentes. Quando não há campo magnético aplicado, a viscosidade é afetada devido a própria presença das partículas ( $\Delta\eta_e$ , contribuição de Einstein [45]). Na presença de campo aparecem outros dois efeitos: o primeiro, linear, relacionado ao fato de as partículas não poderem girar livremente com a vorticidade do escoamento ( $\Delta\eta_s$ , viscosidade rotacional ou contribuição de Shliomis, seção 3.2); o segundo é um efeito não-linear relacionado às interações entre as partículas e à formação de agregados ( $\Delta\eta_{nl}$ ). Desta maneira, a viscosidade pode ser escrita como:

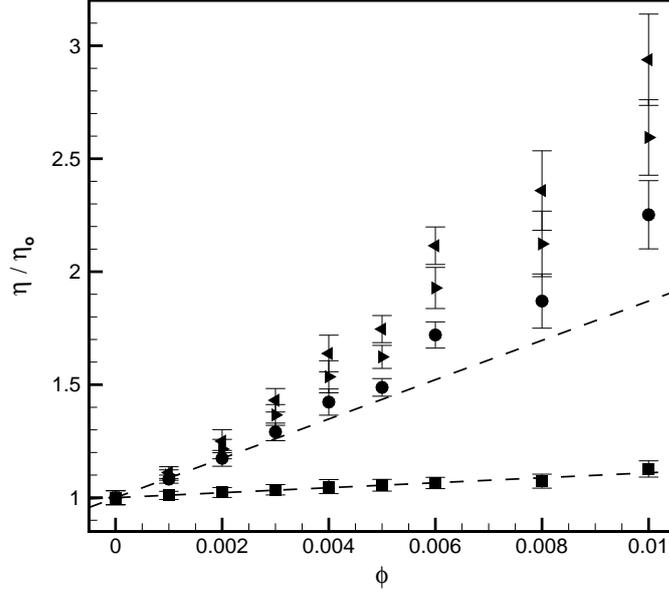


Figura 5.1: Viscosidade em função da concentração volumétrica  $\phi$  para diferentes campos aplicados com uma taxa de cisalhamento constante  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$ . Na figura:  $\blacksquare$   $\alpha = 0$  ,  $\bullet$   $\alpha = 1,45$  ,  $\blacktriangleright$   $\alpha = 2,61$  e  $\blacktriangleleft$   $\alpha = 4,51$ .

$$\frac{\eta}{\eta_o} = 1 + \Delta\eta_e + \Delta\eta_s + \Delta\eta_{nl} . \quad (5.2)$$

Temos, portanto, uma maneira de quantificar essa contribuição não-linear à viscosidade total da suspensão:

$$\Delta\eta_{nl} = \frac{\eta}{\eta_o} - (1 + \Delta\eta_e + \Delta\eta_s) . \quad (5.3)$$

Para suspensões diluídas de partículas com diâmetro uniforme, estatisticamente homogêneas e sem a presença de agregados, as contribuições para  $\Delta\eta_e$  e  $\Delta\eta_s$  são conhecidas e dadas por:

$$\Delta\eta_e = k_1\phi \quad e \quad (5.4)$$

$$\Delta\eta_s = k_2\phi \frac{\alpha L(\alpha)}{2 + \alpha L(\alpha)} , \quad (5.5)$$

com  $k_1 = 5/2$  e  $k_2 = 3/2$ . Aqui,  $L$  é a função de Langevin dada por  $L(x) = \coth(x) - 1/x$ . Como a suspensão ensaiada apresenta agregados, as constantes  $k_1$  e  $k_2$  são diferentes das

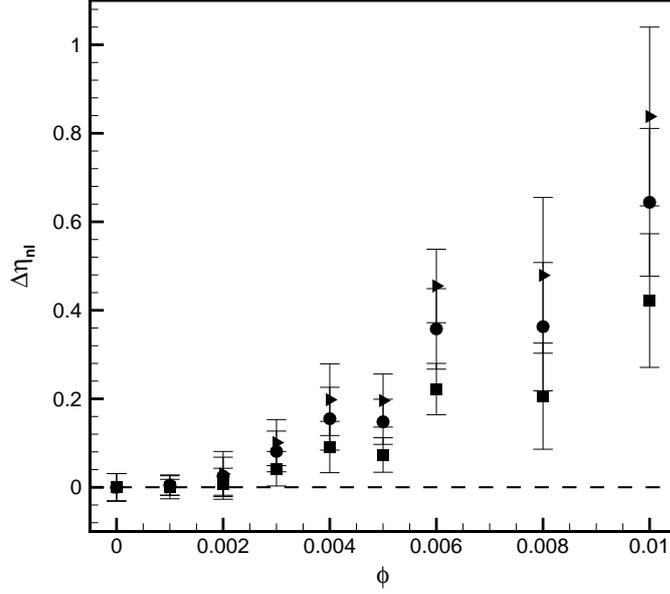


Figura 5.2: Contribuição não-linear para a viscosidade total em função da fração volumétrica com taxa de cisalhamento constante  $\dot{\gamma} = 100s^{-1}$ . Na figura:  $\blacksquare$   $\alpha = 1,45$  ,  $\bullet$   $\alpha = 2,61$  e  $\blacktriangleright$   $\alpha = 4,51$ .

determinadas teoricamente, devendo ser ajustadas de acordo com os pontos experimentais. A figura (5.2) mostra a contribuição  $\Delta\eta_{nl}$  em função de  $\phi$  para diferentes campos aplicados. Nota-se que, para baixas frações volumétricas, essa contribuição é pequena, pois nessas condições não são formados grandes aglomerados e estes não interagem entre si. Já para concentrações maiores o efeito não-linear é significativo, já que grandes aglomerados estão presentes.

A figura (5.3) mostra a viscosidade em função da fração volumétrica de partículas com uma taxa de cisalhamento de  $100 s^{-1}$  na ausência de campo externo aplicado. Observa-se um comportamento linear, de acordo com a predição de Einstein. A equação da reta é dada por:

$$\frac{\eta}{\eta_o} = 1 + 11\phi , \quad (5.6)$$

portanto  $k_1 = 11$  nesse caso.

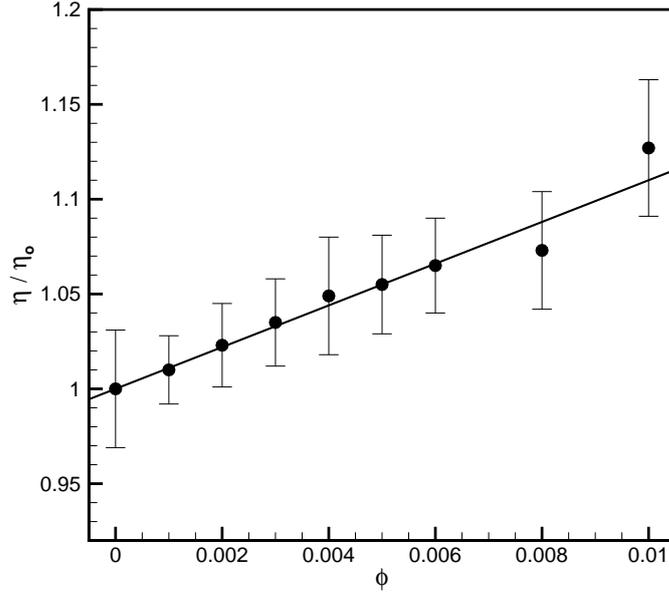


Figura 5.3: Viscosidade em função da fração volumétrica de partículas  $\phi$  sem campo externo aplicado e com uma taxa de cisalhamento constante  $\dot{\gamma} = 100s^{-1}$ . A linha cheia representa o ajuste linear dado pela equação (5.6).

Nas figuras (5.4), (5.5) e (5.6) são mostradas as viscosidades em função da fração volumétrica de partícula com  $\dot{\gamma} = 100 s^{-1}$  para  $\alpha = 1, 45, 2, 61$  e  $4, 51$ , respectivamente. Como as frações volumétricas das suspensões são pequenas, optou-se por usar uma expansão de Taylor da função  $C_1 \exp(C_2\phi)$ , resultando em:

$$\frac{\eta}{\eta_0} = 1 + C_1\phi\left[1 + C_2\phi + \frac{C_2^2\phi^2}{2!} + \dots + (k!)^{-1}C_2^k\phi^k\right], \quad (5.7)$$

em que  $C_1$  e  $C_2$  são constantes experimentais de calibração. Comparando com as equações (5.4) e (5.5) nota-se que  $C_1 = k_1 + k_2$ , ou seja,  $C_1$  representa as contribuições lineares à viscosidade, enquanto  $C_2$  contabiliza os efeitos não-lineares relacionados à formação de agregado anisotrópicos. Nas figuras  $C_1$  é constante para os diferentes  $\alpha$ , enquanto  $C_2$  é ajustável, e seus valores são dados nas legendas. Pelos resultados nota-se que quanto maior o campo magnético aplicado menor a região em que o regime linear prediz corretamente os dados experimentais. Isso ocorre porque campos mais intensos favorecem a formação de agregados maiores de partículas, causando uma forte não-linearidade e heterogeneidade na suspensão magnética, mesmo para baixas frações volumétricas.

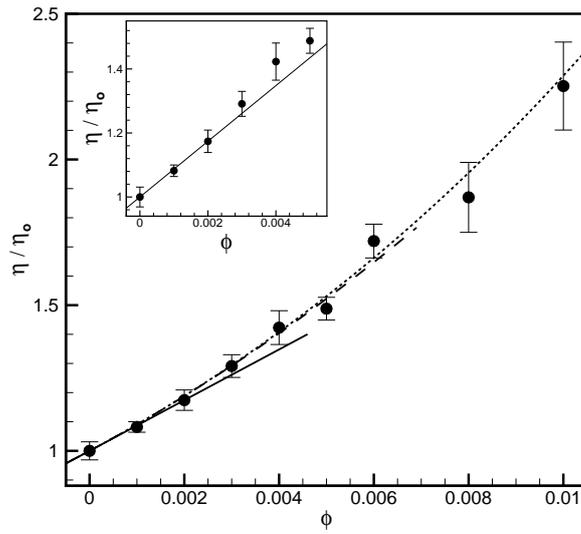


Figura 5.4: Viscosidade em função da concentração volumétrica  $\phi$  com  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$  e  $\alpha = 1,45$ . A linha cheia representa o ajuste  $O(\phi)$  da equação (5.7), a linha tracejada  $O(\phi^2)$  e a pontilhada  $O(\phi^3)$ . Neste caso:  $C_1 = 87$  e  $C_2 = 45$ . O encarte mostra o detalhe da parte linear.

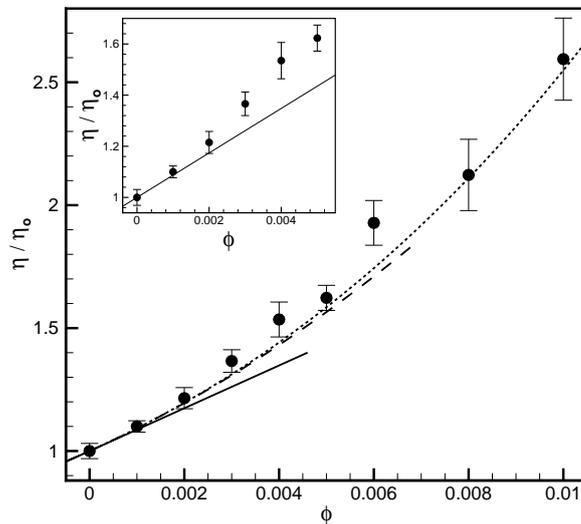


Figura 5.5: Viscosidade em função da concentração volumétrica  $\phi$  com  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$  e  $\alpha = 2,61$ . A linha cheia representa o ajuste  $O(\phi)$  da equação (5.7), a linha tracejada  $O(\phi^2)$  e a pontilhada  $O(\phi^3)$ . Neste caso:  $C_1 = 87$  e  $C_2 = 60$ . O encarte mostra o detalhe da parte linear.

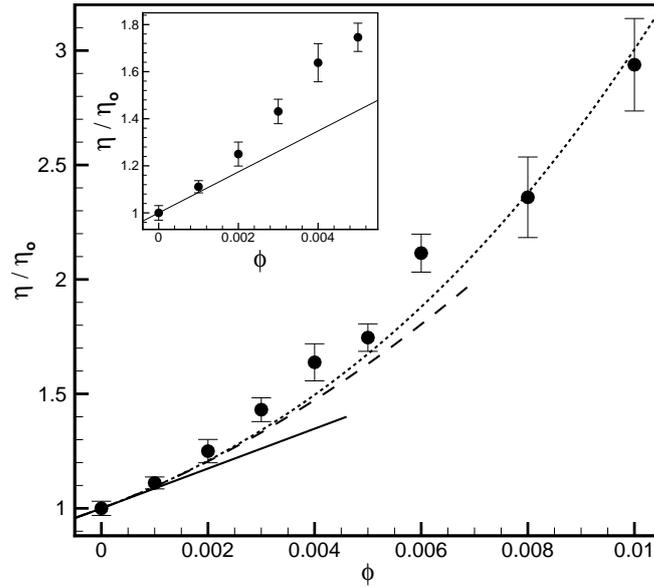


Figura 5.6: Viscosidade em função da concentração volumétrica  $\phi$  com  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$  e  $\alpha = 4,51$ . A linha cheia representa o ajuste  $O(\phi)$  da equação (5.7), a linha tracejada  $O(\phi^2)$  e a pontilhada  $O(\phi^3)$ . Neste caso:  $C_1 = 87$  e  $C_2 = 90$ . O encarte mostra o detalhe da parte linear.

As figuras (5.7) e (5.9) apresentam, assim como a figura (5.1), a viscosidade em função da fração volumétrica de partículas de magnetita na suspensão. Aqui porém as taxas de cisalhamento são de  $500 \text{ s}^{-1}$  e  $1000 \text{ s}^{-1}$ , respectivamente. Nota-se que uma taxa de cisalhamento maior leva a um menor efeito do aumento da fração volumétrica na viscosidade da suspensão, já que taxas de cisalhamento maiores destroem os aglomerados formados quando há campo aplicado. Nota-se também um aumento da “região linear” quando há campo aplicado. As figuras (5.8) e (5.10) mostram a contribuição não-linear com taxas de cisalhamento de  $500 \text{ s}^{-1}$  e  $1000 \text{ s}^{-1}$ , respectivamente. Nota-se uma semelhança qualitativa ao caso com taxa de cisalhamento de  $100 \text{ s}^{-1}$ , mas os valores são menores para taxas de cisalhamento maiores, como explicado, devido a quebra de aglomerados.

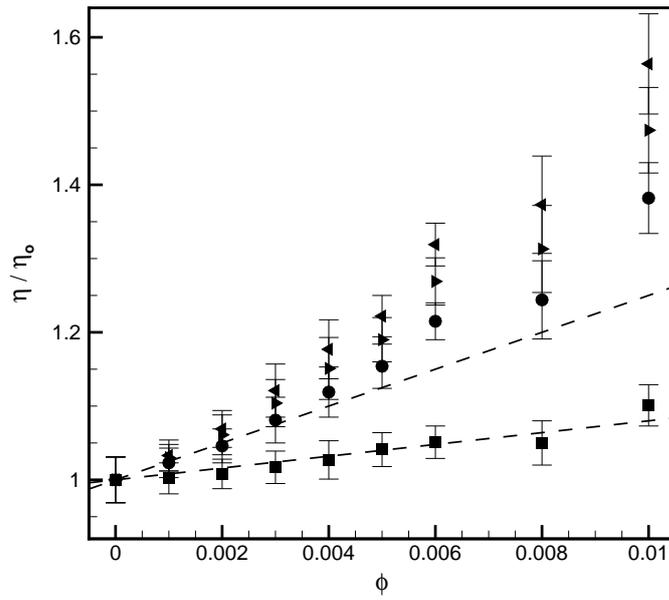


Figura 5.7: Viscosidade em função da concentração volumétrica  $\phi$  com  $\dot{\gamma} = 500 \text{ s}^{-1}$ . Na figura:  $\blacksquare$   $\alpha = 0$  ,  $\bullet$   $\alpha = 1,45$  ,  $\blacktriangleright$   $\alpha = 2,61$  e  $\blacktriangleleft$   $\alpha = 4,51$ .

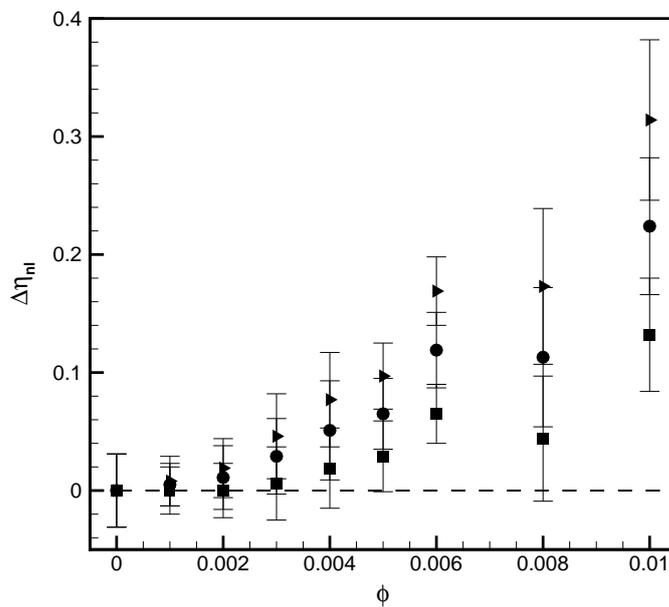


Figura 5.8: Contribuição não-linear para a viscosidade total em função da fração volumétrica com taxa de cisalhamento constante  $\dot{\gamma} = 500 \text{ s}^{-1}$ . Na figura:  $\blacksquare$   $\alpha = 1,45$  ,  $\bullet$   $\alpha = 2,61$  e  $\blacktriangleright$   $\alpha = 4,51$ .

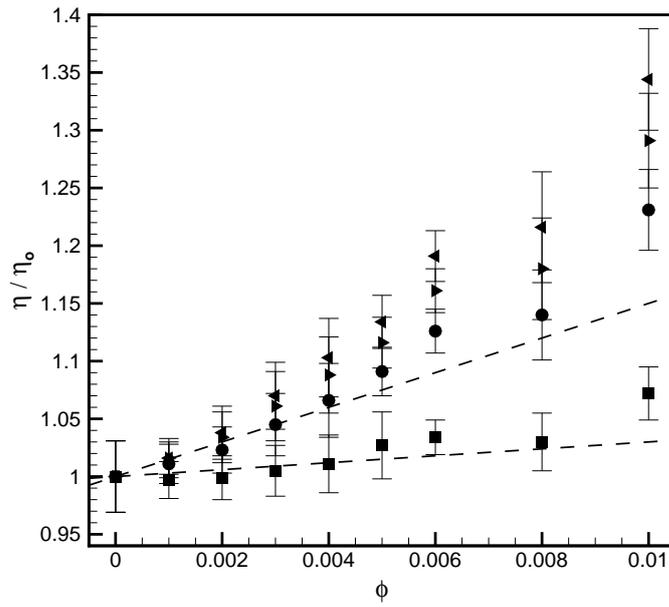


Figura 5.9: Viscosidade em função da concentração volumétrica  $\phi$  com  $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$ . Na figura:  $\blacksquare$   $\alpha = 0$  ,  $\bullet$   $\alpha = 1,45$  ,  $\blacktriangleright$   $\alpha = 2,61$  e  $\blacktriangleleft$   $\alpha = 4,51$ .

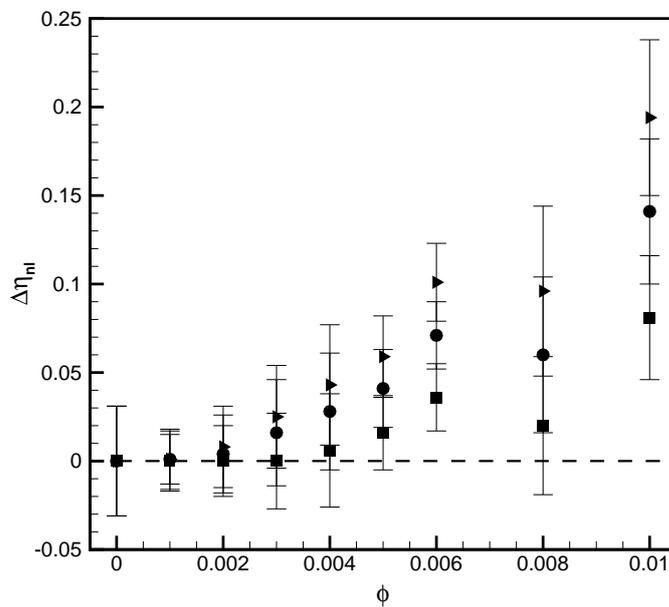


Figura 5.10: Contribuição não-linear para a viscosidade total em função da fração volumétrica com taxa de cisalhamento constante  $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$ . Na figura:  $\blacksquare$   $\alpha = 1,45$  ,  $\bullet$   $\alpha = 2,61$  e  $\blacktriangleright$   $\alpha = 4,51$ .

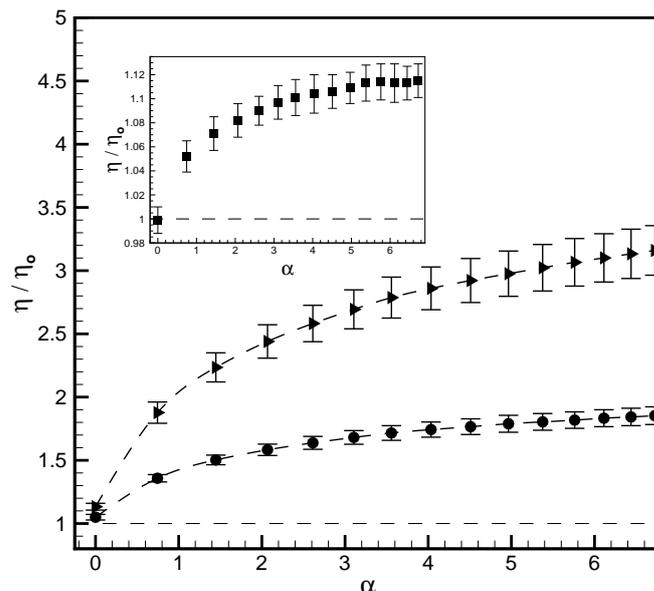


Figura 5.11: Viscosidade em função do campo adimensional  $\alpha$  para diferentes concentrações volumétricas de magnetita e com taxa de cisalhamento constante  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$ . Na figura:  $\blacksquare$   $\phi = 0,001$  (no encarte) ,  $\bullet$   $\phi = 0,005$  e  $\blacktriangleright$   $\phi = 0,01$ .

A figura (5.11) mostra a viscosidade em função do campo externo adimensional  $\alpha$  aplicado com uma taxa de cisalhamento de  $100 \text{ s}^{-1}$  para diferentes frações volumétricas. Um aumento de apenas 10% e uma rápida saturação da viscosidade podem ser observados para  $\phi = 0,001$ , já que neste caso não são formadas grandes estruturas (como mostram as análises no microscópio na seção 5.1.2). Já no caso de  $\phi = 0,01$  a viscosidade triplica e não é alcançada a saturação da viscosidade neste caso, mesmo usando o campo máximo fornecido pelo reômetro. Na figura (5.12) o coeficiente  $k_2$  da equação (5.5) usado para descrever os resultados experimentais é de 162. Quando o aumento da viscosidade é causado apenas pelo torque interno das partículas este coeficiente é de  $3/2$ , de acordo com a teoria de Shliomis (ver seção 3.2). Essa discrepância na comparação analítico-experimental mostra que o aumento da viscosidade da suspensão de magnetita é causado também por outros efeitos, como a formação de estruturas, não previstos na teoria.

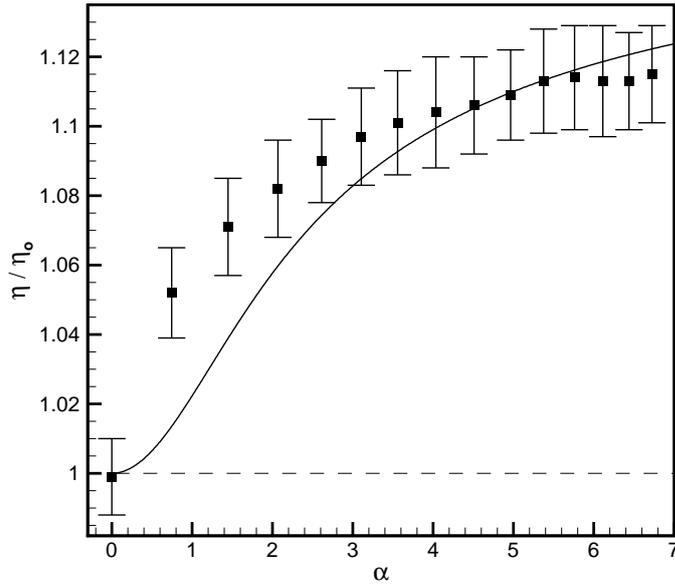


Figura 5.12: Viscosidade em função do campo adimensional  $\alpha$  para  $\phi = 0,001$  e com taxa de cisalhamento constante  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$ . A linha cheia representa uma aproximação de  $\Delta\eta_s$  dado pela equação (5.5) com  $k_2 = 165$ .

As figuras (5.13), (5.14), (5.15) e (5.16) apresentam a viscosidade para diferentes frações volumétricas de magnetita e diferentes campos aplicados em função da taxa de cisalhamento adimensionalizada pela taxa de cisalhamento máxima utilizada  $\dot{\gamma}_{max} = 2000 \text{ s}^{-1}$ , sendo a menor taxa de cisalhamento aplicada igual a  $20 \text{ s}^{-1}$ . Nota-se que as suspensões apresentam um comportamento newtoniano, com a viscosidade constante, quando não há campo aplicado. Com campo, no entanto, nota-se um pronunciável *shear-thinning* na suspensão. Para descrever esse comportamento foi utilizada a fórmula empírica de Sisko [52], dada por:

$$\frac{\eta}{\eta_0} = 1 + k \dot{\gamma}^{n-1}, \quad (5.8)$$

em que  $k$  e  $n$  são coeficientes ajustáveis.

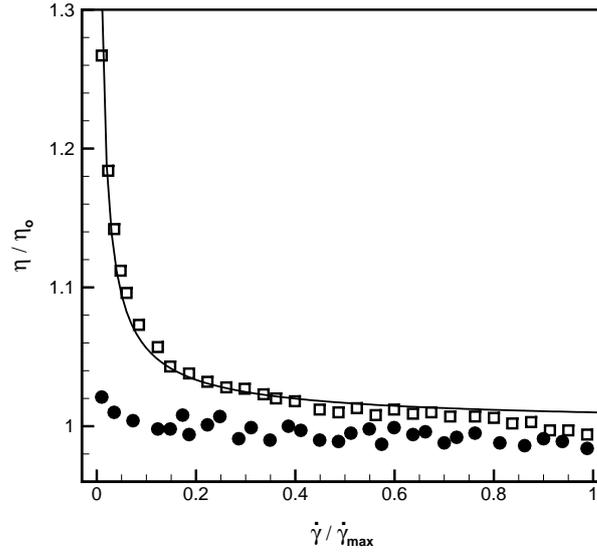


Figura 5.13: Viscosidade em função da taxa de cisalhamento  $\dot{\gamma}$  para  $\phi = 0,001$ . As barras de erro, com um tamanho máximo de 5%, foram omitidas para facilitar a visualização e  $\dot{\gamma}_{max} = 2000 \text{ s}^{-1}$  representa a taxa de cisalhamento máxima utilizada. Na figura:  $\bullet$   $\alpha = 0$ ,  $\square$   $\alpha = 4,51$  e a linha cheia representa um ajuste com a equação (5.8), com  $k = 0,01$  e  $n = 0,25$ .

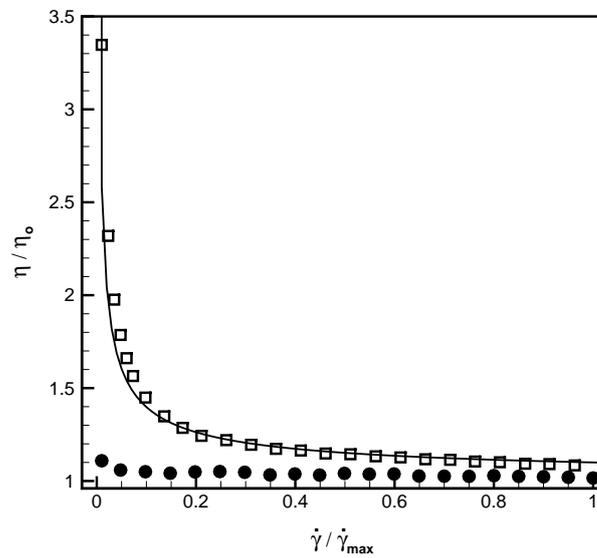


Figura 5.14: Viscosidade em função da taxa de cisalhamento  $\dot{\gamma}$  para  $\phi = 0,005$ . As barras de erro, com um tamanho máximo de 5%, foram omitidas para facilitar a visualização e  $\dot{\gamma}_{max} = 2000 \text{ s}^{-1}$  representa a taxa de cisalhamento máxima utilizada. Na figura:  $\bullet$   $\alpha = 0$ ,  $\square$   $\alpha = 4,51$  e a linha cheia representa um ajuste com a equação (5.8), com  $k = 0,1$  e  $n = 0,4$ .

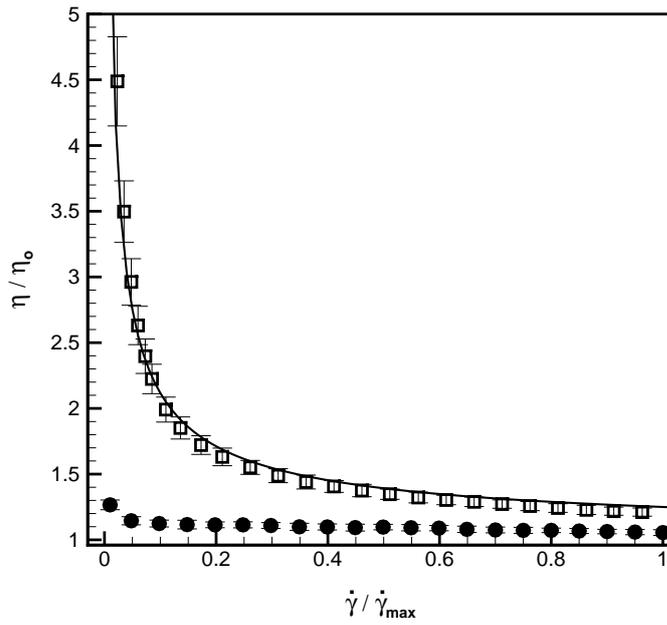


Figura 5.15: Viscosidade em função da taxa de cisalhamento  $\dot{\gamma}$  para  $\phi = 0,01$  e  $\dot{\gamma}_{max} = 2000 \text{ s}^{-1}$  representa a taxa de cisalhamento máxima utilizada. Na figura: ●  $\alpha = 0$  , □  $\alpha = 4,51$  e a linha cheia representa um ajuste com a equação (5.8), com  $k = 0,25$  e  $n = 0,35$ .

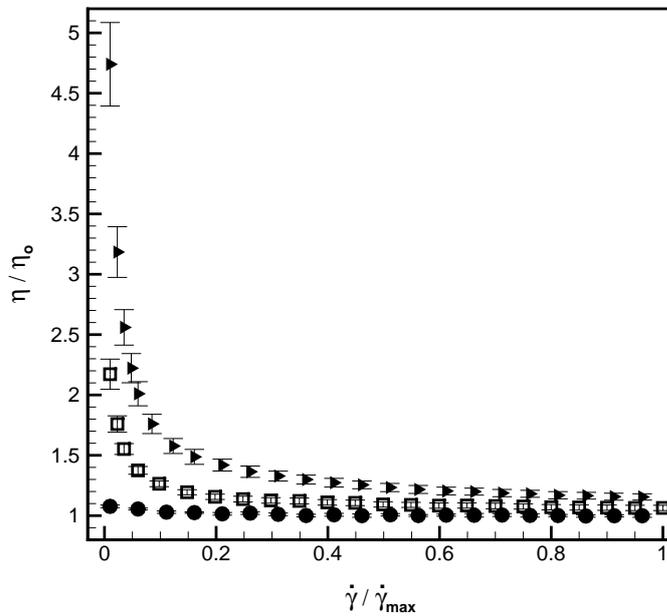


Figura 5.16: Viscosidade em função da taxa de cisalhamento  $\dot{\gamma}$  para  $\alpha = 1,45$  e  $\dot{\gamma}_{max} = 2000 \text{ s}^{-1}$  representa a taxa de cisalhamento máxima utilizada. Na figura: ●  $\phi = 0,001$  , □  $\phi = 0,005$  e ▶  $\phi = 0,01$ .

Para  $\dot{\gamma} = 2000 \text{ s}^{-1}$  obtém-se, para essa suspensão magnética,  $Pe = 0,69$ . Isso significa que o tempo de relaxação magnética  $\tau_B$  é menor que um tempo característico do escoamento  $\tau_c$ , mesmo para a maior taxa de cisalhamento utilizada. Seria esperado uma baixa influência do cisalhamento no comportamento reológico da suspensão. No entanto as figuras (5.13), (5.14), (5.15) e (5.16) mostram que mesmo quando  $\dot{\gamma}/\dot{\gamma}_{max} < 0,1$  ( $Pe < 0,07$ ), o cisalhamento tem grande influência no comportamento da suspensão. Deve ser considerado aqui um terceiro tempo de relaxação  $\tau_{est}$  relacionado à estrutura formada pelas partículas na presença de campo magnético. Uma escala típica para  $\tau_{est}$  é dada por:

$$\tau_{est} \sim \frac{\eta_o}{\Sigma_e} . \quad (5.9)$$

Na equação (5.9)  $\Sigma_e = \Sigma_e(H)$  representa a tensão mínima de escoamento (*yield stress*). Quando um campo é aplicado os aglomerados formados fazem com que a suspensão apresente um comportamento visco-plástico. É necessária uma tensão mínima para que o cisalhamento inicie. Essa tensão  $\Sigma_e$  depende da intensidade  $H$  do campo magnético aplicado. Quanto mais intenso o campo mais aglomerados irão se formar e com maiores comprimentos  $R$  típicos, resultando em valores maiores de  $\Sigma_e$ . A razão entre  $\tau_{est}$  e o tempo característico do cisalhamento  $\tau_c = 1/\dot{\gamma}$  resulta no parâmetro aqui denominado capilaridade magnética  $Ca_m$ :

$$Ca_m = \frac{\tau_{est}}{\tau_c} = \frac{\eta \dot{\gamma}}{\Sigma_e} . \quad (5.10)$$

O número de capilaridade  $Ca_m$  denota a interação entre o escoamento e as estruturas magnéticas, enquanto o número de  $Pe$  expressa a capacidade do escoamento de girar uma partícula isolada. Portanto, mesmo que  $\tau_B$  seja muito menor que  $\tau_c$ , resultando em um baixo número de Péclet, o tempo de relaxação da estrutura  $\tau_{est}$  pode ser da ordem de  $\tau_c$ . Assim o escoamento interage com as estruturas quebrando-as. Isso é observado como um significativo *shear-thinning* nos resultados das figuras.

## 5.1.2 Análise Microestrutural

Foram feitas análises da microestrutura na presença e na ausência de campo externo aplicado. Para as análises na presença de campo, a amostra foi submetida a uma indução magnética de  $0,3T$ , durante 1 minuto.

As imagens das figuras (5.17), (5.18), (5.19), (5.20), (5.21) e (5.22) mostram a estrutura para diferentes frações volumétricas com e sem a presença de um campo magnético externo aplicado. Nota-se que a estrutura é aproximadamente isotrópica quando não há campo aplicado, mesmo para o caso com maior fração volumétrica, que é de 1%. Formam-se agregados mesmo na ausência de campo magnético, mas não é observada uma direção preferencial de alinhamento dessas estruturas. Já quando a amostra é colocada na presença de um campo, observa-se uma forte tendência de alinhamento dos aglomerados de partículas na direção desse campo, resultando em estruturas anisotrópicas. Essa mudança na característica microestrutural da suspensão tem consequência direta na reologia da mesma, como é mostrado na figura (5.23). A figura (5.23) apresenta os mesmos resultados da figura (5.1), mas com imagens da microestrutura nos encartes. Os encartes apresentam uma explicação microestrutural para o comportamento reológico da suspensão. Nota-se que o comportamento não-linear da viscosidade da suspensão magnética é justificado pela anisotropia estrutural dos aglomerados que são formados para maiores frações volumétricas e se alinham na direção do campo aplicado.

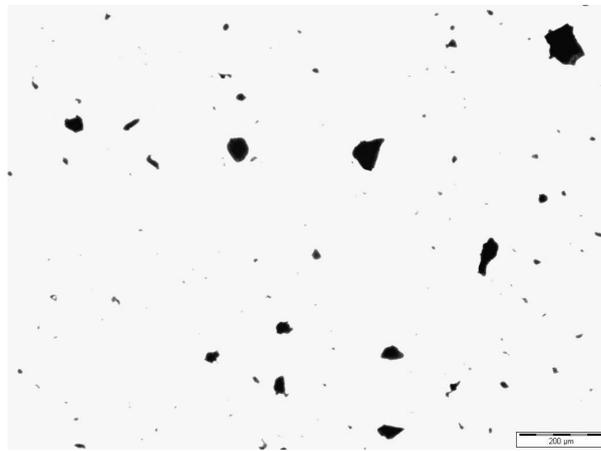


Figura 5.17: Imagem da estrutura da suspensão com  $\phi = 0,1\%$  sem a presença de campo magnético.

Os histogramas apresentados nas figuras (5.24), (5.25) e (5.26) mostram os tamanhos típicos das estruturas principais de suspensões com diferentes frações volumétricas de magnetita na presença e ausência de campo magnético aplicado. Nota-se um aumento significativo no tamanho dessas estruturas quando na presença de campo. No histograma da figura



Figura 5.18: Imagem da estrutura da suspensão com  $\phi = 0,1\%$  com a presença de campo magnético.

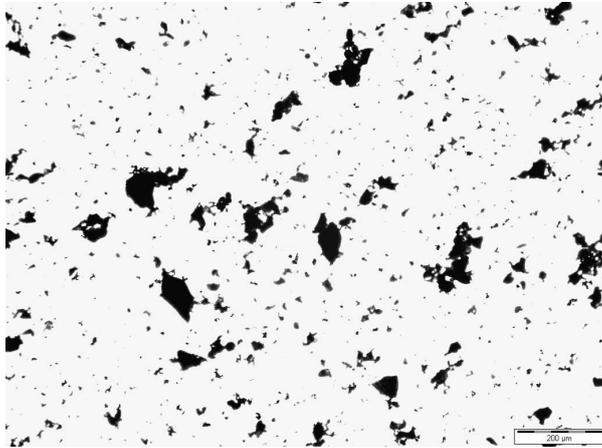


Figura 5.19: Imagem da estrutura da suspensão com  $\phi = 0,5\%$  sem a presença de campo magnético. Distribuição de estruturas mais homogênea e isotrópica.

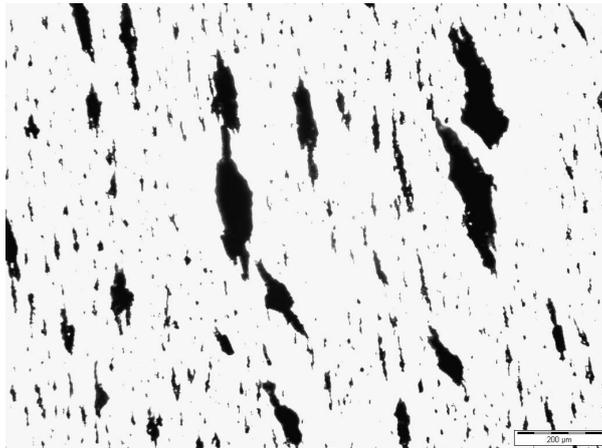


Figura 5.20: Imagem da estrutura da suspensão com  $\phi = 0,5\%$  com a presença de campo magnético. Presença de cadeias anisotrópicas induzidas pela presença do campo.

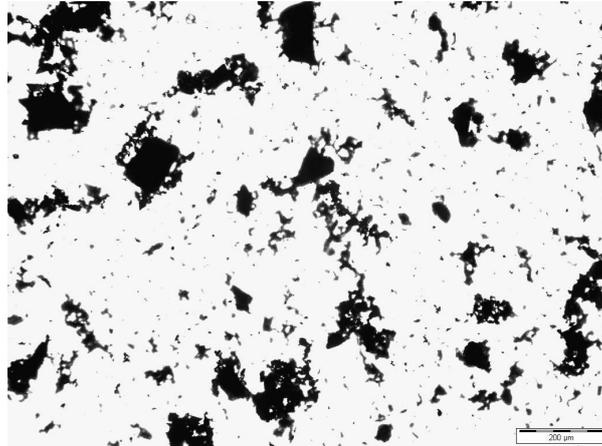


Figura 5.21: Imagem da estrutura da suspensão com  $\phi = 1,0\%$  sem a presença de campo magnético.

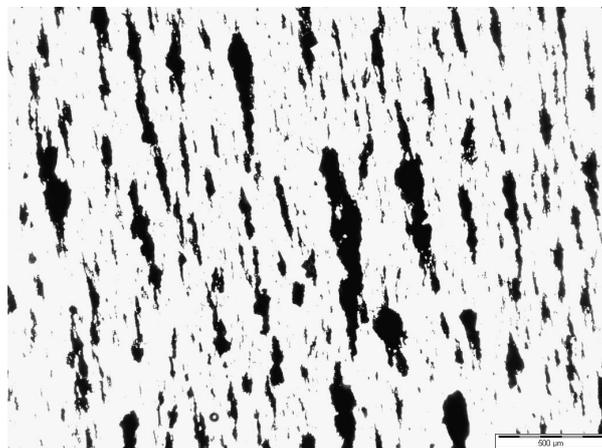


Figura 5.22: Imagem da estrutura da suspensão com  $\phi = 1,0\%$  com a presença de campo magnético. Verifica-se uma estrutura dominada pela formação de longas cadeias anisotrópicas caracterizando efeitos fortemente não-lineares na suspensão magnética levando a um aumento pronunciado da viscosidade.

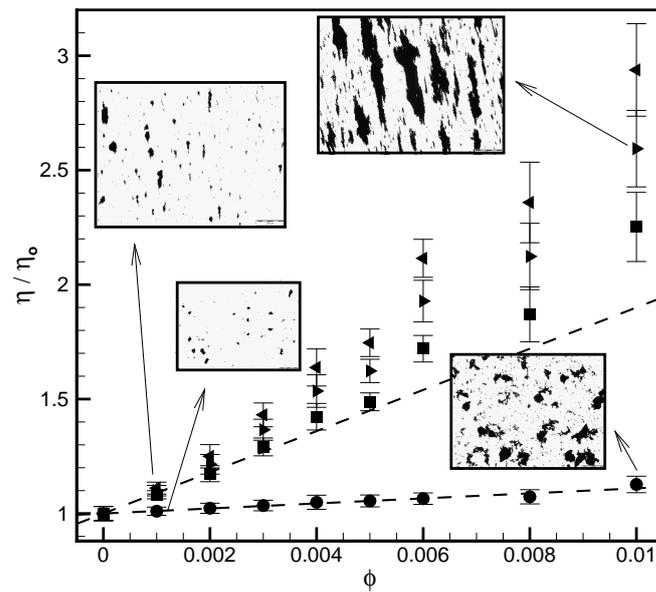


Figura 5.23: Viscosidade em função da concentração volumétrica  $\phi$  para diferentes campos aplicados com uma taxa de cisalhamento constante  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$ . As imagens representam as estruturas do fluido magnético com e sem campo aplicado, mostrando o efeito da orientação e da formação de agregados no comportamento reológico do fluido. Na figura:  $\bullet$   $\alpha = 0$ ,  $\blacksquare$   $\alpha = 1,45$ ,  $\blacktriangleright$   $\alpha = 2,61$  e  $\blacktriangleleft$   $\alpha = 4,51$ .

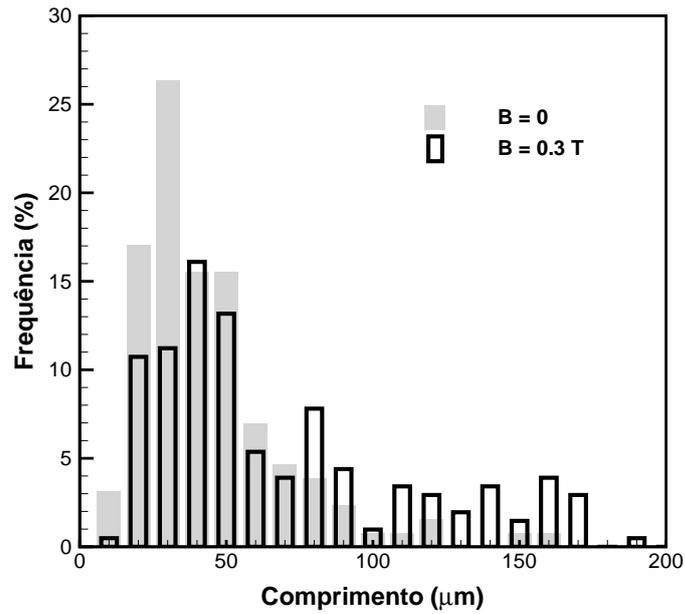


Figura 5.24: Tamanho das estruturas principais na ausência e na presença de campo externo para  $\phi = 0,1\%$ .

(5.26) é feita uma comparação da distribuição do tamanho das estruturas com uma distribuição normal, que caracteriza uma configuração randômica e independente. Nota-se que o histograma para a condição sem campo é melhor caracterizado pela distribuição normal que o histograma referente à condição com campo aplicado, este muito mais heterogêneo.

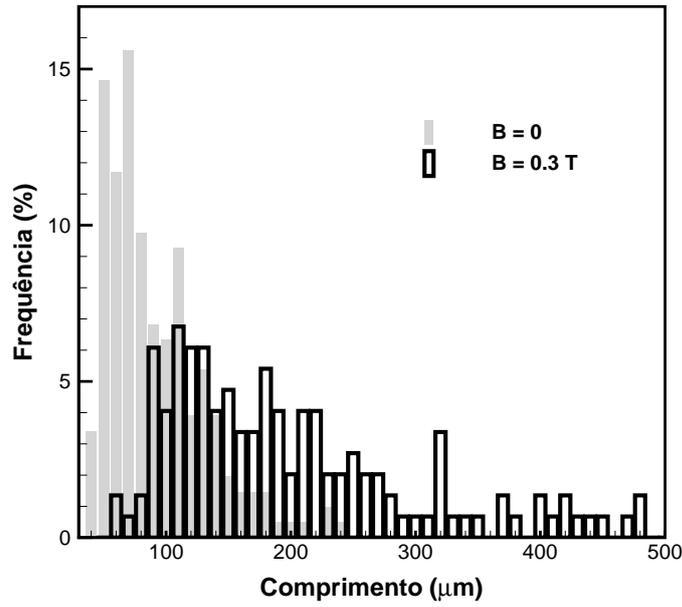


Figura 5.25: Tamanho das estruturas principais na ausência e na presença de campo externo para  $\phi = 0,5\%$ .

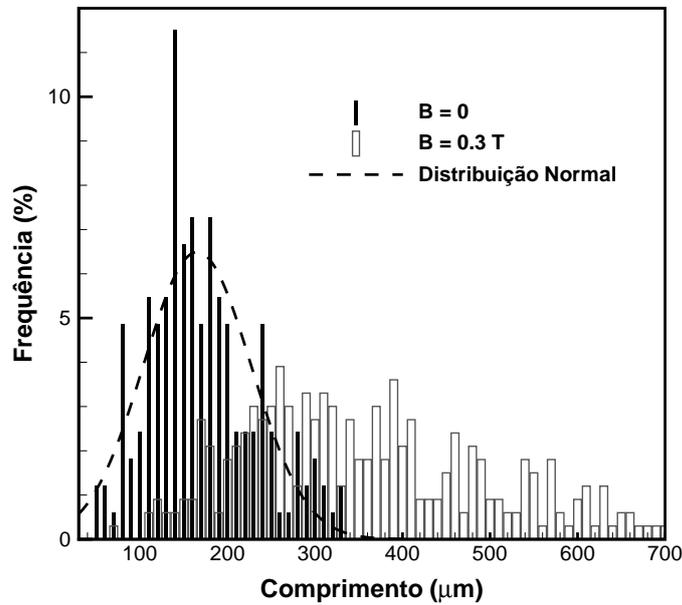


Figura 5.26: Tamanho das estruturas principais na ausência e na presença de campo externo para  $\phi = 1,0\%$ . Comparação com a distribuição normal.

## 5.2 FCNS5AO

Aqui são apresentados resultados da caracterização do FCNS5AO. Trata-se de um fluido magnético de nanopartículas de maghemita, recobertas com ácido oléico e dispersas em óleo mineral naftênico com fração volumétrica  $\phi = 0,7\%$ . As partículas possuem um diâmetro médio de  $8\text{ nm}$  e cada  $\text{ml}$  do fluido possui aproximadamente  $1,82 \times 10^{16}$  partículas. Esse fluido foi produzido pelo Instituto de Química da Universidade Federal de Goiás [51].

Primeiramente foi determinada a viscosidade do FCNS5AO sem a presença de campo magnético aplicado, como mostra a figura (5.27). Os pontos são médias em cada tempo de 5 realizações (como descrito na seção 4.3) com taxa de cisalhamento  $\dot{\gamma} = 100\text{ s}^{-1}$ . A viscosidade encontrada foi  $\eta_o = 16,24 \pm 0,72\text{ cP}$ . A viscosidade do FCNS5AO sem a presença de campo é utilizada nos gráficos seguintes para adimensionalizar as viscosidades obtidas.

Uma dificuldade observada ao trabalhar com o FCNS5AO é que, devido a sua baixa viscosidade, o reômetro trabalha próximo ao valor mínimo de torque recomendado pelo fabricante. Assim o erro instrumental é significativo e os pontos obtidos apresentam grandes flutuações.

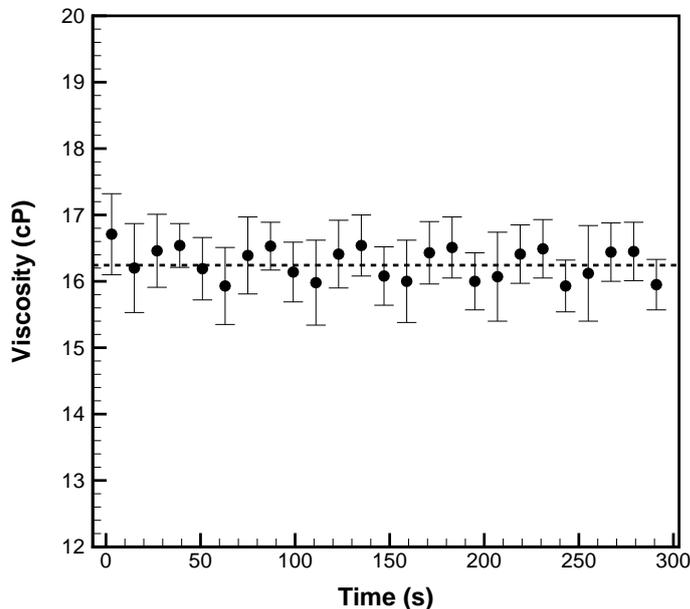


Figura 5.27: Viscosidade do FCNS5AO em função do tempo com  $\dot{\gamma} = 100\text{ s}^{-1}$  e  $\alpha = 0$ . Cada ponto representa a média de 5 realizações naquele tempo. A linha pontilhada representa a média final obtida.

A figura (5.28) mostra a viscosidade do FCNS5AO em função do campo magnético

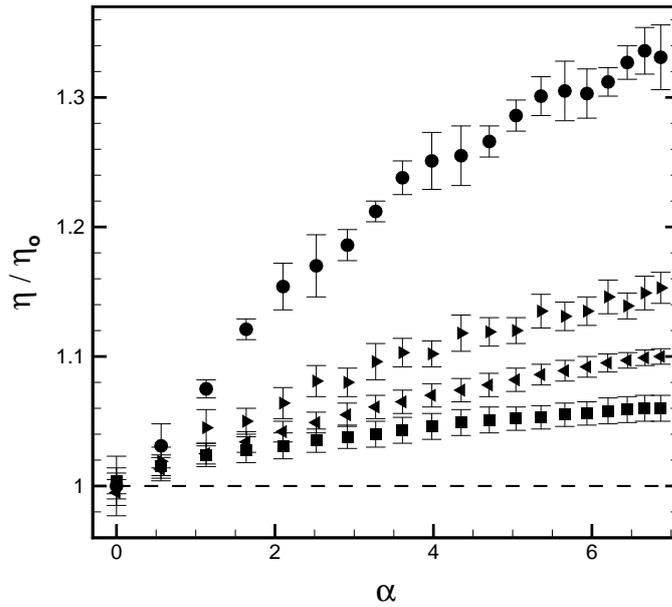


Figura 5.28: Viscosidade do FCNS5AO em função do campo magnético aplicado para diferentes taxas de cisalhamento. Na figura: ●  $\dot{\gamma} = 100 \text{ s}^{-1}$ , ►  $\dot{\gamma} = 300 \text{ s}^{-1}$ , ◄  $\dot{\gamma} = 500 \text{ s}^{-1}$  e ■  $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$ .

aplicado para diferentes taxas de cisalhamento. O campo magnético é adimensionalizado e aparece como o parâmetro  $\alpha$ . Na figura (5.29) é feita uma comparação com o modelo de Shliomis, dado pela equação (5.5). O coeficiente que ajusta os dados é  $k_2 = 10$ . Como o coeficiente é muito maior que  $3/2$  (obtido na teoria da seção 3.2), há contribuição de efeitos não-lineares no aumento da viscosidade da suspensão, como formação de cadeias anisotrópicas.

As figuras (5.30) e (5.31) mostram a viscosidade em função da taxa de cisalhamento. A taxa de cisalhamento varia entre  $40$  e  $2000 \text{ s}^{-1}$ , sendo adimensionalizada pela taxa máxima. Nota-se o comportamento newtoniano desse fluido na ausência de campo aplicado, mostrado pela figura (5.30). Já a figura (5.31) mostra que há uma resposta não-newtoniana quando há campo aplicado. O modelo de Sisko, equação (5.8), é usado para descrever os resultados. A explicação para o comportamento não-newtoniano é a mesma dada para a suspensão magnética de magnetita em óleo mineral, seção (5.1). Com o campo aplicado as partículas apresentam tendência de alinhamento com o campo, tornando maior o trabalho do escoamento para girar as partículas. Mas o aumento da viscosidade é causado principalmente pela formação de cadeias ou estruturas anisotrópicas orientadas na direção do campo. O cisalhamento deforma e quebra essas cadeias. A energia extra utilizada para deformar e quebrar as cadeias é traduzida em um aumento de viscosidade. O valor máximo

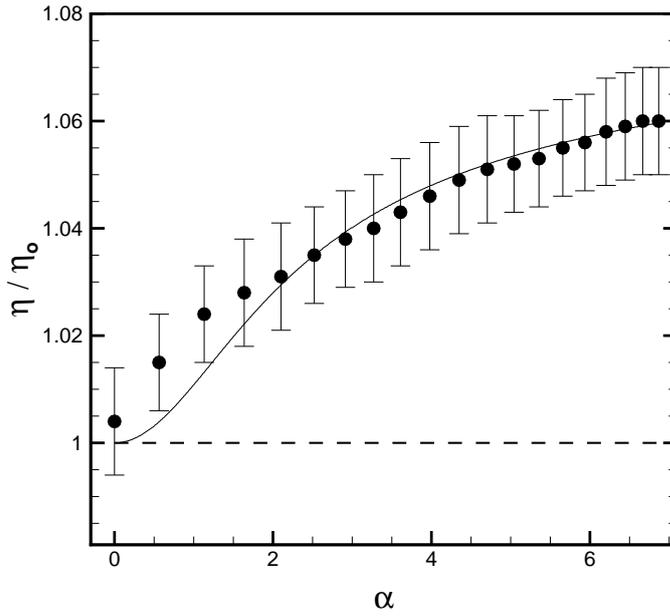


Figura 5.29: Viscosidade do FCNS5AO em função do campo magnético aplicado para  $\dot{\gamma} = 1000 \text{ s}^{-1}$ . A linha cheia representa uma comparação com o modelo de Shliomis dado pela equação (5.5), com  $k_2 = 10$ .

de  $Pe$  nessa situação é de 0,04. A influência do cisalhamento na viscosidade da suspensão pode ser explicada com a inclusão de um tempo característico da estrutura de partículas  $\tau_{est}$  resultando no parâmetro capilaridade magnética  $Ca_m$  (ver seção 5.1), quando dividido por  $\tau_c$ . Esse parâmetro explica porque o cisalhamento é importante mesmo em situações em que  $\tau_B \ll \tau_c$ . Nota-se que para altas taxas de cisalhamento o campo magnético não possui influência significativa na viscosidade da suspensão, já que as estruturas estão todas desfeitas pelo cisalhamento. Nesse regime  $\tau_{est} \ll \tau_c$ .

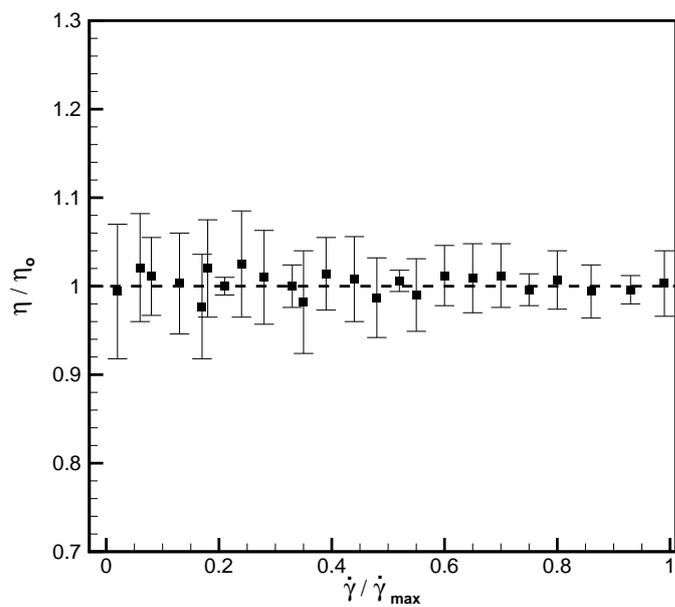


Figura 5.30: Viscosidade do FCNS5AO em função da taxa de cisalhamento  $\dot{\gamma}$  sem a presença de campo magnético.

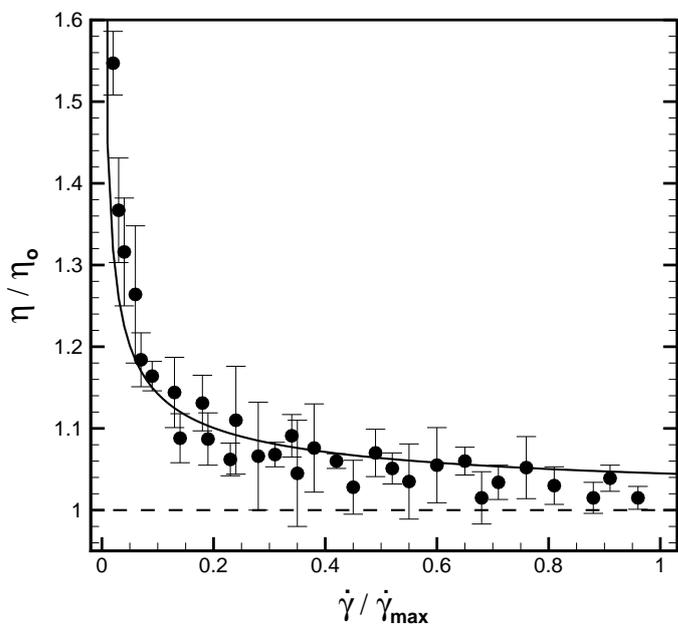


Figura 5.31: Viscosidade do FCNS5AO em função da taxa de cisalhamento  $\dot{\gamma}$  com  $\alpha = 4, 51$ . A linha cheia representa um ajuste com a equação (5.8), com  $k = 0,045$  e  $n = 0,5$ .

# Capítulo 6

## Simulação Numérica de Suspensões Magnéticas sob a Ação de Campo e Cisalhamento

Nesse capítulo são apresentados e descritos modelos numéricos utilizados na presente dissertação para simular uma suspensão de partículas magnéticas com interações magnéticas dipolares. A suspensão também pode estar sob ação de um campo magnético externo e um campo hidrodinâmico de cisalhamento simples.

### 6.1 INTRODUÇÃO

Para determinar propriedades microscópicas e macroscópicas (ou médias) da suspensão magnética são realizadas simulações numéricas do comportamento de muitas partículas interagindo magneticamente em um fluido base. A suspensão é composta de  $N$  partículas rígidas e esféricas, com diâmetro  $\sigma$ , que se encontram em uma célula (*box*) cúbica de aresta  $L$ . As partículas encontram-se dispersas em um fluido newtoniano com viscosidade dinâmica  $\eta$ . O fluido base não é diretamente simulado, apenas o efeito do mesmo sobre as partículas devido o movimento browniano e o arrasto viscoso de Stokes é simulado. A suspensão está sujeita a um campo magnético externo uniforme  $\mathbf{H}$ . Cada partícula  $i$  possui um momento de dipolo permanente  $\mathbf{m}_i$  fixado em seu centro, com  $\mathbf{m}_i = m_i \mathbf{d}_i$ , em que  $m_i$  representa o módulo do vetor momento de dipolo da partícula  $i$  e  $\mathbf{d}_i$  é o vetor unitário na direção do momento de dipolo da partícula  $i$ . Como o momento de dipolo magnético é fixo à partícula, admite-se que  $\tau_B \ll \tau_N$ , como explicado na seção (2.5).

Para simular o sistema de partículas magnéticas em um fluido newtoniano, são usados

dois métodos numéricos: o método de Monte Carlo e o método de Dinâmica de Langevin. O método de Monte Carlo [4] utiliza a energia potencial das partículas para fazer evoluções de configurações a partir de uma configuração inicial e permite simular apenas condições de equilíbrio (método estático). Por outro lado no método da Dinâmica de Langevin as equações do movimento são integradas e é feita uma evolução temporal da suspensão magnética [4]. Ambos os métodos são implementados para interação magnética dipolar por adição de pares com a metodologia aperiódica denominada mínima imagem e com somas de Ewald em espaços periódicos.

A seguir apresenta-se uma descrição sucinta das metodologias numéricas.

## 6.2 MONTE CARLO

No método estático de Monte Carlo, usado para simular sistemas em equilíbrio, parte-se de uma configuração inicial e através de movimentos aleatórios o sistema é evoluído no espaço de configurações [4]. Não são usados nesse método a força e o torque explicitamente, apenas a equação da energia potencial total da partícula. O sistema é levado a uma configuração de equilíbrio com mínima energia permitida. Um procedimento típico, descrito por Frenkel e Smit [53], é apresentado no próximo parágrafo.

Seja uma partícula  $i$  escolhida aleatoriamente. Determina-se, também aleatoriamente, se a partícula será transladada ou rotacionada. Calcula-se a energia potencial de todo o sistema antes e depois desse movimento. Se a nova energia for menor que a anterior, o movimento é aceito e o sistema evolui para essa nova configuração. Se a energia potencial calculada depois do movimento ( $U_2$ ) aleatório é maior do que a anterior ao movimento ( $U_1$ ), então é feita uma comparação. Gera-se um número randômico ( $rd$ ) com probabilidade uniforme no intervalo  $[0, 1)$ . Se  $rd \leq \exp(U_1 - U_2)$  então o movimento é aceito. Se  $rd > \exp(U_1 - U_2)$ , então o movimento não é aceito e a partícula  $i$  retorna à sua posição/orientação anterior ao movimento. A configuração obtida, mesmo sendo igual à anterior no caso de movimento não admitido, é computada nos cálculos das propriedades médias, como a magnetização. Um passo da simulação corresponde a  $N$  movimentos (ou não-movimentos) iguais ao descrito anteriormente. O movimento da partícula, seja translacional ou rotacional, é aleatório e o seu valor máximo é definido de maneira que a taxa de aceitação (razão entre quantidade de movimentos aceitos e a quantidade total de movimentos) esteja entre 30% e 50%. O procedimento é resumido da seguinte maneira:

1. É calculada a energia potencial total do sistema  $U_1$ .
2. Uma partícula  $i$  é aleatoriamente escolhida. É escolhido também aleatoriamente se a

partícula irá transladar ou rotacionar.

3. Se for determinado que a partícula translate, são gerados 3 números aleatórios no intervalo  $[-\delta r_{max}, \delta r_{max}]$ , sendo  $\delta r_{max}$  o valor máximo permitido ao movimento. Cada um desses números é adicionado a uma componente do vetor posição da partícula  $\mathbf{r}_i$ . Se for determinado que a partícula gire, um procedimento análogo é realizado, em que  $\delta(d)_{max}$  é o valor máximo permitido à variação de cada componente do vetor orientação de momento de dipolo  $\mathbf{d}_i$ . Depois é feita uma renormalização do vetor  $\mathbf{d}_i$ , já que este é sempre unitário.
4. A nova energia potencial  $U_2$  do sistema após o movimento é calculada.
5. Se  $U_2 \leq U_1$  então o movimento é aceito. Se  $U_2 > U_1$  gera-se um número randômico  $rd$  no intervalo  $[0, 1)$ . Se  $rd \leq \exp(U_2 - U_1)$  o movimento é aceito. Se  $rd > \exp(U_1 - U_2)$  o movimento é recusado.
6. Se o movimento é aceito a nova configuração é incluída nos cálculos das propriedades médias. Se o movimento não é aceito, o sistema volta para sua condição anterior à proposta de movimento e essa configuração é incluída novamente nos cálculos das propriedades médias.
7.  $N$  propostas de movimento, aceitas ou não, correspondem a um passo.

Um problema encontrado nas simulações é com relação à finitude da célula. As partículas sentem o efeito das superfícies próximas ou paredes que limitam a célula e isso influencia em seus comportamentos. Uma solução encontrada é criar uma célula ‘infinita’ (sem paredes), como é descrito na próxima seção.

### 6.2.1 Método da Mínima Imagem

Para superar a questão dos limites de finitude do sistema, são usados domínios ‘infinitos’ nas simulações [53]. A célula central de partículas é replicada em todas as direções como mostra a figura (6.1) em um esquema bidimensional, para mais fácil visualização. Assim, o movimento da partícula 1 na célula central é realizado também por todas as suas imagens nas células imagem. Quando uma partícula sai da célula central, sua imagem entra na célula central pelo lado oposto, garantindo um número  $N$  constante de partículas durante toda a simulação. No método da Mínima Imagem é criada uma célula (com mesmas dimensões da célula central) em torno da partícula e a mesma interage com as partículas ou imagens no interior deste domínio físico. Na figura (6.1), por exemplo, a partícula 1 interage com a imagem da partícula 2 da célula superior à esquerda, e não com a partícula 2 da célula

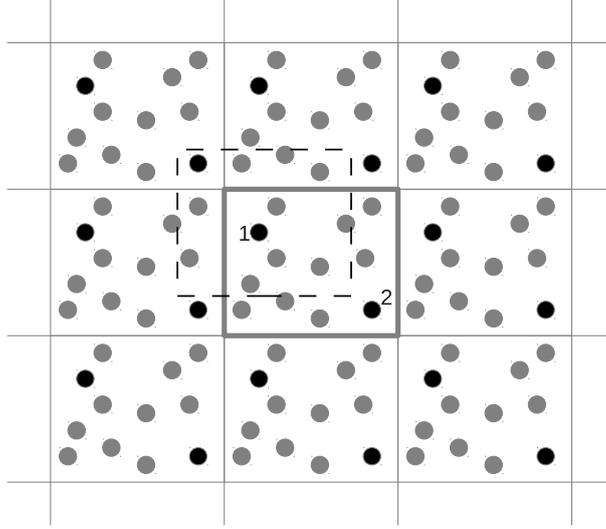


Figura 6.1: Esquema do método da Mínima Imagem, mostrando a célula central e as suas imagens.

central. Nesse método cada partícula interage com as  $N - 1$  partículas, ou suas imagens, mais próximas.

A energia potencial da partícula  $i$  é calculada de acordo com o descrito na seção (2.1.6). Tem-se:

$$U_i = U_i^d + U_i^f + U_i^{HS} , \quad (6.1)$$

com

$$U_i^d = \sum_{j \neq i} \frac{\mu_0 m_i m_j}{4\pi r_{ij}^3} \{(\mathbf{d}_i \cdot \mathbf{d}_j) - 3(\mathbf{d}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\mathbf{d}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})\} \quad (6.2)$$

e

$$U_i^f = -\mu_0 m_i \mathbf{d}_i \cdot \mathbf{H} . \quad (6.3)$$

Em que  $\hat{\mathbf{r}}_{ij}$  é o vetor unitário na direção do vetor  $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$ , com  $\mathbf{r}_i$  indicando a posição do centro da partícula  $i$ . Na equação (6.1)  $U_i^d$ , representa a parcela da energia devido a interações entre os dipolos (partícula-partícula),  $U_i^f$  representa a parcela da energia potencial da partícula  $i$  devido a interação entre o dipolo e o campo aplicado (partícula-campo) e  $U_i^{HS}$  é a energia de curto-alcance da interação entre duas partículas. O modelo de interação de curto-alcance utilizado só afetará a microestrutura ou alguma propriedade magnética final se houverem grandes forças de agregação [36, 54] . Como são esperadas que essas forças sejam moderadas, é escolhido, por conveniência de programação, o modelo de

esfera rígida:

$$U_i^{HS} = \begin{cases} \infty & \text{se } r \leq \sigma \\ 0 & \text{se } r > \sigma \end{cases} . \quad (6.4)$$

Com esse modelo é apenas evitado que as partículas se sobreponham. Se, em algum movimento aleatório de evolução do sistema, uma se sobrepõe a outra, o movimento é rejeitado e o sistema volta para o estado anterior ao movimento. Um outro modelo de interação de curta distância é o potencial de Lennard-Jones  $U_i^{LJ}$ , bastante utilizado na literatura [34, 35, 55]. Esse modelo é dado por:

$$U_i^{LJ} = \begin{cases} 4\epsilon((\sigma/r)^{12} - (\sigma/r)^6) & \text{se } r \leq r_{cut} \\ 0 & \text{se } r > r_{cut} \end{cases} . \quad (6.5)$$

Após adimensionalização, as componentes da equação da energia são dadas por:

$$U_i^d = \lambda \sum_{j \neq i} \frac{1}{r_{ij}^3} \{(\mathbf{d}_i \cdot \mathbf{d}_j) - 3(\mathbf{d}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\mathbf{d}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})\}$$

e

$$U_i^f = -\alpha \mathbf{d}_i \cdot \hat{\mathbf{h}} . \quad (6.7)$$

Os grupos adimensionais  $\alpha$  e  $\lambda$  são definidos na seção (2.6). Nas simulações neste trabalho todas as partículas são consideradas com o mesmo diâmetro  $e$ , portanto, com a mesma magnitude de momento de dipolo  $m$ .

## 6.2.2 Somas de Ewald em Espaços Periódicos

Forças de longo alcance são aquelas que não decaem mais rapidamente que  $r^{-3}$ , como as interações hidrodinâmicas, as forças de interação entre íons ou cargas elétricas e também entre dipolos. Isso significa que o alcance dessas interações é quase sempre maior que a metade da célula, tornando o método da mínima imagem inadequado. Além disso a soma da energia não converge facilmente. Uma solução para esse problema seria aumentar o tamanho da célula, o que corresponde a um aumento no número de partículas na simulação, até que esse valor seja maior que o alcance dessas forças. Trata-se de uma solução inviável, já que o custo computacional é proporcional ao quadrado do número de partículas. Outra solução é contabilizar essas interações através de somas analíticas convergentes.

Um método para calcular a soma da energia potencial em sistemas periódicos é o método de *lattice* das Somas de Ewald [56], desenvolvido inicialmente para contabilizar as interações iônicas entre cristais. Trabalhos pioneiros na simulação de sistemas líquidos polares e dipolares usando somas de Ewald incluem [30, 31, 32, 33, 57]. Nesse método a célula central é replicada periodicamente em todas as direções. A energia potencial de interação entre os dipolos é dada por:

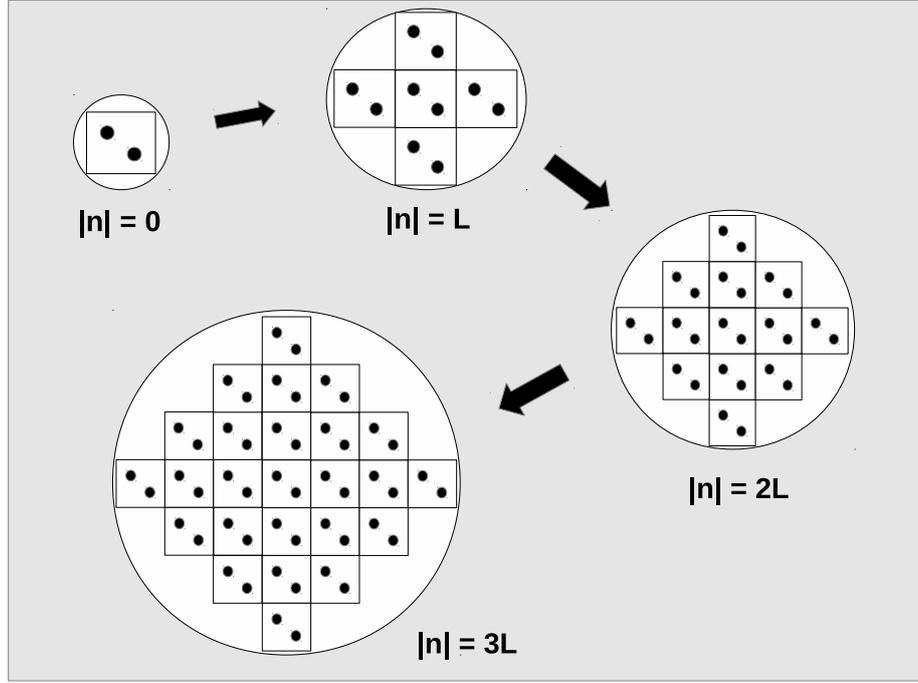


Figura 6.2: Esquema mostrando a periodicidade do sistema para utilização das somas de Ewald (adaptado de [4]).

$$U_i^d = \sum_{j=1}^N \sum'_{\mathbf{n} \in \mathbb{Z}^3} \frac{\mu_0 m_i m_j}{4\pi |\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|^3} \left\{ (\mathbf{d}_i \cdot \mathbf{d}_j) - \frac{3}{|\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|^2} [\mathbf{d}_i \cdot (\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n})] [\mathbf{d}_j \cdot (\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n})] \right\} \quad (6.8)$$

O vetor  $\mathbf{n} = (n_x L, n_y L, n_z L)$ , com  $n_x, n_y$  e  $n_z$  inteiros, é usado para realizar a soma em todos os pontos da *lattice*. A linha após o somatório é para indicar que o termo  $i = j$  não deve ser contabilizado quando  $\mathbf{n} = \mathbf{0}$ , pois resultaria na soma da energia potencial de uma partícula com ela mesma. As células vizinhas são adicionadas da seguinte maneira [4]: primeiro é considerado  $|\mathbf{n}| = 0$ , que corresponde à célula central; em seguida são adicionados os termos referentes a  $|\mathbf{n}| = L$ , ou seja,  $\mathbf{n} = (\pm L, 0, 0)$ ,  $\mathbf{n} = (0, \pm L, 0)$  e  $\mathbf{n} = (0, 0, \pm L)$ ; depois os termos  $|\mathbf{n}| \leq 2L$  e assim sucessivamente. A medida que as células são somadas o sistema periódico infinito se torna esférico, como mostra a figura (6.2). Neste trabalho é considerado que a superfície em volta da esfera de células é metálica, com isso nenhum termo de energia relacionado ao meio circundante é considerado [58]. Considerando as células periódicas com essa construção garante a convergência da soma da energia dada por (6.8). No entanto essa convergência é muito lenta e seria necessário um número inviável de células.

O método das somas de Ewald, que acelera a convergência do somatório, consiste em escrever a energia potencial  $U_i^d$  dada por (6.8) como o somatório de um termo no espaço real e outro no espaço recíproco (ou inverso), acelerando a convergência. O método é

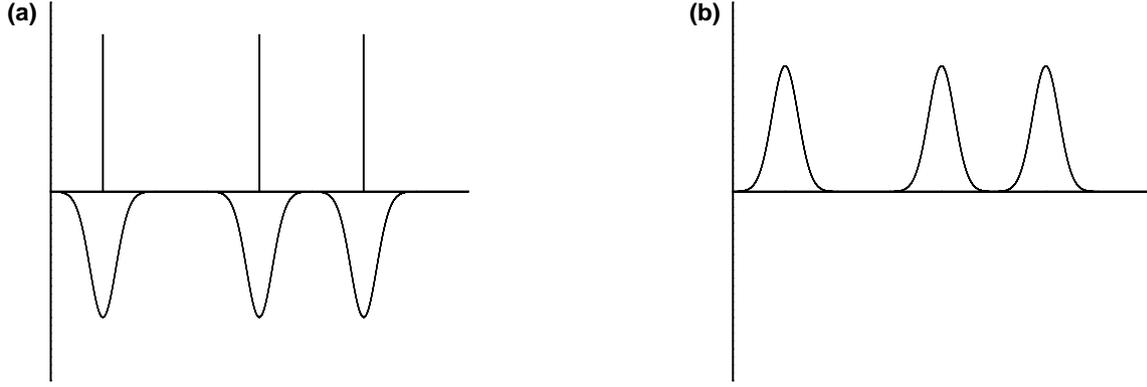


Figura 6.3: Esquema de distribuição de cargas no método das somas de Ewald. Em (a) é mostrado o somatório no espaço real, com as cargas pontuais originais e as distribuições com cargas opostas. Em (b) é mostrado o esquema do somatório no espaço inverso, em que as distribuições possuem carga de mesmo sinal que as cargas originais.

desenvolvido com maior simplicidade considerando que a partícula  $i$  possui uma carga elétrica  $q_i$  no lugar de um momento de dipolo  $\mathbf{d}_i$ . A energia potencial elétrica  $U_i^q$  da partícula  $i$ , já considerando a periodicidade do sistema, é dada por:

$$U_i^q = \sum_{j=1}^N \sum'_{\mathbf{n} \in \mathbb{Z}^3} q_i q_j |\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|^{-1} . \quad (6.9)$$

A energia potencial dipolar é obtida a partir da equação (6.9) substituindo  $q_i$  por  $\mathbf{d}_i \cdot \nabla$ . Às cargas pontuais existentes são adicionadas cargas distribuídas nos pontos correspondentes às cargas originais, com sinal oposto no espaço real e com mesmo sinal no espaço inverso. A figura (6.3) mostra um esquema dessa soma. Como as cargas adicionais se cancelam, o sistema não é alterado. As cargas distribuídas são dadas por distribuições gaussianas  $\Phi(r)$  da forma:

$$Q_i(r) = q_i \Phi(r) = q_i \frac{\xi^3}{\pi^{3/2}} \exp(-\xi^2 r^2) . \quad (6.10)$$

A escolha da função para a carga distribuída não exerce influência significativa na soma final da energia. A distribuição gaussiana é escolhida por ser o modelo original adotado por Ewald. Outras distribuições são analisadas por Heyes [59]. O parâmetro  $\xi$  é importante na determinação da velocidade da convergência. Para valores altos ( $\xi \sim 10$ ) a convergência no espaço inverso é mais rápida que no espaço real. Já para valores de  $\xi$  próximos de 0 a convergência no espaço real é mais rápida que no espaço inverso. Então é necessário um

valor intermediário de  $\xi$  para equilibrar a convergência nos dois espaços, como será discutido posteriormente. O termo da energia correspondente ao espaço real é dado por [60] :

$$U_i^{qr} = \sum_{j=1}^N \sum'_{\mathbf{n} \in \mathbb{Z}^3} \frac{q_i q_j}{|\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|} \left[ 1 - \int_0^\infty \Phi(r - r_{ij}) \right] . \quad (6.11)$$

Substituindo (6.10) em (6.11) resulta:

$$U_i^{qr} = \sum_{j=1}^N \sum'_{\mathbf{n} \in \mathbb{Z}^3} q_i q_j \frac{\text{erfc}(\xi |\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|)}{|\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|} . \quad (6.12)$$

A função  $\text{erfc}(x)$  é a função erro complementar, e é dada por [61]:

$$\text{erfc}(x) = 2\pi^{-1/2} \int_x^\infty \exp(-t^2) dt . \quad (6.13)$$

Para calcular o termo referente à soma das cargas distribuídas no espaço inverso, considere-se inicialmente cargas pontuais. A densidade de carga pode ser escrita como:

$$\rho_q(r) = \sum_j q_j \delta(r - r_j) . \quad (6.14)$$

Como a *lattice* é periódica, a densidade de carga pode ser escrita como uma série de Fourier:

$$\rho_q(r) = \frac{1}{L^3} \sum_j \sum_{\mathbf{k}} f(\mathbf{k}) \exp(-i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) , \quad (6.15)$$

em que

$$\mathbf{k} = \frac{2\pi}{L} (k_x, k_y, k_z) , \quad (6.16)$$

com  $k_x$ ,  $k_y$  e  $k_z$  inteiros, é o vetor correspondente a  $\mathbf{n}$  no espaço recíproco de Fourier e

$$f(\mathbf{k}) = \int_V \rho_q(r) \exp(i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) dV , \quad (6.17)$$

em que  $V = L^3$  é o volume da célula unitária. Substituindo (6.14) em (6.17) temos:

$$f(\mathbf{k}) = \sum_j q_j \exp(i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j) . \quad (6.18)$$

Considerando agora a carga distribuída, a densidade de carga é dada por:

$$\rho'_q(r) = \sum_j q_j \Phi(r - r_j) = \int_V \rho_q(r - r') \Phi(r') dV . \quad (6.19)$$

A integral em (6.19) é a convolução de  $\rho_q$  com  $\Phi$ . No espaço de Fourier,  $\rho'_q$  é escrita como:

$$\rho'_q(r) = \frac{1}{L^3} \sum'_{\mathbf{k} \in \mathcal{Z}^3} f(\mathbf{k}) e^{-(k/2\xi)^2} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} . \quad (6.20)$$

O termo da energia potencial elétrica correspondente ao espaço inverso é dado por [60]:

$$U_i^{qk} = \int_0^\infty q_i \frac{\rho'_q(r_i + r)}{r} dV = \frac{4\pi}{L^3} \sum_{j=1}^N \sum'_{\mathbf{k} \in \mathcal{Z}^3} \frac{q_i q_j}{k^2} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_{ij}} e^{-(k/2\xi)^2} . \quad (6.21)$$

No cálculo da energia da equação (6.21) foi considerada a interação das distribuições de carga no espaço inverso com elas mesmas. Para corrigir o valor final da energia potencial é subtraído o valor correspondente a essas interações  $U_i^{qs}$ :

$$U_i^{qs} = q_i \int_0^\infty q_i \Phi(r) dV = \frac{\xi}{\pi^{1/2}} q_i^2 . \quad (6.22)$$

Assim, usando o método das somas de Ewald, a energia potencial da carga  $i$  devido interação elétrica com outras cargas é dada por:

$$U_i^q = \sum_{j=1}^N \left( \sum'_{\mathbf{n} \in \mathcal{Z}^3} q_i q_j \frac{\text{erfc}(\xi |\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|)}{|\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|} + \frac{4\pi}{L^3} \sum'_{\mathbf{k} \in \mathcal{Z}^3} \frac{q_i q_j}{k^2} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_{ij}} e^{-(k/2\xi)^2} \right) - \frac{\xi}{\pi^{1/2}} q_i^2 . \quad (6.23)$$

Para obter a equação da energia potencial de interação dipolar a partir da equação (6.23) basta substituir  $q_i$  por  $\mathbf{d}_i \cdot \nabla$ . O resultado final é dado por:

$$U_i^d = U_i^r + U_i^k + U_i^{self} , \quad (6.24)$$

em que  $U_i^r$  é a contribuição do espaço real,  $U_i^k$  é a do espaço recíproco e  $U_i^{self}$  é devido a interações com a imagem da própria partícula  $i$ . Os termos da equação 6.24, já adimensionalizados, são dados por [62] :

$$U_i^r = \lambda \sum_{j=1}^N \sum'_{\mathbf{n} \in \mathcal{Z}^3} \{ (\mathbf{d}_i \cdot \mathbf{d}_j) B(|\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|) - [\mathbf{d}_i \cdot (\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n})][\mathbf{d}_j \cdot (\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n})] C(|\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|) \} , \quad (6.25)$$

$$U_i^k = \frac{\lambda}{L^3} \sum_{\mathbf{k} \in \mathbb{Z}^3, \mathbf{k} \neq \mathbf{0}} \frac{4\pi}{k^2} e^{-(k/2\xi)^2} \sum_{j=1}^N (\mathbf{d}_i \cdot \mathbf{k})(\mathbf{d}_j \cdot \mathbf{k}) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij}} \quad (6.26)$$

e

$$U_i^{self} = \frac{-2\xi^3 \lambda}{3\sqrt{\pi}} . \quad (6.27)$$

Em que:

$$B(r) = [\text{erfc}(\xi r) + (2\xi r/\sqrt{\pi})\exp(-\xi^2 r^2)]/r^3 , \quad (6.28)$$

$$C(r) = [3\text{erfc}(\xi r) + (2\xi r/\sqrt{\pi})(3 + 2\xi^2 r^2)\exp(-\xi^2 r^2)]/r^5 . \quad (6.29)$$

A energia potencial total  $U_i$  da partícula  $i$  em cada configuração inclui ainda a energia de interação com campo magnético externo aplicado  $U_i^f$  e o potencial interação de curto alcance de esfera rígida definido na subseção (6.2.1). Assim:

$$U_i = U_i^d + U_i^f + U_i^{HS} , \quad (6.30)$$

em que

$$U_i^f = -\alpha(\mathbf{d}_i \cdot \hat{\mathbf{h}}) . \quad (6.31)$$

Em [62] é mostrado que com  $n = 2$  e  $k = 4\pi/L$  já há convergência. Portanto foram usados esses valores no presente trabalho. No mesmo trabalho é obtido como valor ótimo de convergência  $\xi = 0.72/\sigma$ , valor também adotado nas presentes simulações.

Outro método para computar as interações dipolares de longo alcance utilizado na literatura é o método *reaction field*, ou campo de resposta [63, 64, 65]. O campo magnético que age sobre partícula é composto por duas partes. A primeira é a interação dessa partícula com as vizinhas dentro de um raio crítico. Para a segunda parcela da soma, considera-se que as partículas que possuem distância em relação a partícula teste maior que o raio crítico formam um contínuo, com permeabilidade magnética  $\mu_s$ . Uma desvantagem do método de campo de resposta é que  $\mu_s$  depende da própria magnetização do sistema, assim teria que ser determinado previamente ou por métodos iterativos.

Por sua vez, uma desvantagem do método de somas de Ewald é a consideração da natureza periódica do fluido. No entanto, simulações utilizando os dois métodos obtiveram resultados muito semelhantes para um número de partículas maior que 108 [66, 67], mostrando a equivalência entre os métodos. O método das somas de Ewald foi escolhido por não ser necessária a determinação prévia de parâmetro de permeabilidade e também por ser utilizado em outras aplicações, como na simulação das interações hidrodinâmicas entre partículas [68, 69, 70, 71].

### 6.3 DINÂMICA DE LANGEVIN

Nesse método a suspensão parte de uma configuração inicial de partículas e evolui dinamicamente para uma estrutura determinada por meio da integração numérica de um sistema de equações diferenciais tipo Langevin acopladas para a translação e rotação de cada partícula. Essas equações são dadas por [4] :

$$M_i \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = -3\pi\eta\sigma \frac{d\mathbf{r}_i}{dt} + \frac{1}{6}\Delta\rho\mathbf{g}\pi\sigma^3 + \mathbf{F}_i^{HS} + \mathbf{F}_i^m + 3\pi\eta\sigma\mathbf{\Gamma}_i^t \quad e \quad (6.32)$$

$$J_i \frac{d^2(\mathbf{d}_i)}{dt^2} = -\pi\eta\sigma^3 \frac{d(\mathbf{d}_i)}{dt} + \mathbf{T}_i^m + \pi\eta\sigma^3 \mathbf{\Gamma}_i^r \times \mathbf{d}_i . \quad (6.33)$$

A partícula  $i$  possui massa  $M_i$  e momento de inércia  $J_i$ ,  $\eta$  é a viscosidade do fluido base em que estão suspensas as partículas,  $\Delta\rho = \rho_i - \rho$  é a diferença de massa específica da partícula  $i$  e do fluido e  $\mathbf{g}$  é a aceleração gravitacional local. A força magnética agindo sobre a partícula  $i$  é representada por  $\mathbf{F}_i^m$  e  $\mathbf{T}_i^m$  representa o torque magnético. Já  $\mathbf{\Gamma}_i^t$  representa um deslocamento estocástico devido ao movimento browniano causado pelas colisões entre as moléculas do fluido base e a partícula  $i$  e o seu correspondente angular é dado por  $\mathbf{\Gamma}_i^r$ .

O vetor orientação de momento de dipolo  $\mathbf{d}$  está relacionado à velocidade angular interna  $\boldsymbol{\omega}$ , definido na seção (2.4.4) pela relação:

$$\frac{d(\mathbf{d}_i)}{dt} = \frac{1}{2} \nabla \times \mathbf{u} + \boldsymbol{\omega} . \quad (6.34)$$

Ou seja, a variação temporal do vetor orientação de momento de dipolo da partícula  $i$  é dada pela soma da velocidade angular devido o escoamento e da velocidade angular interna, causada por torques magnéticos.

É importante notar que o fluido base não é explicitamente simulado, mas aparece implicitamente nesses termos de deslocamento estocástico e também com a viscosidade  $\eta$  na

força e torque viscosos, resistindo aos deslocamentos das partículas, além do termo de empuxo de Arquimedes devido a distribuição de pressão sobre a partícula. A parcela da força representada por  $\mathbf{F}_i^{HS}$  é a de curto alcance, derivada do potencial de interação de esferas rígidas, mostrado na seção anterior. Neste caso, as partículas colidem elasticamente.

A força magnética  $F_i^m$  sobre a partícula  $i$  é dada pelo gradiente do potencial magnético  $U_i$

$$\mathbf{F}_i^m = -\nabla(U_i^d + U_i^f) , \quad (6.35)$$

resultando [29, 37] (ver seção 2.1.6) :

$$\begin{aligned} \mathbf{F}_i^m = \sum_{j \neq i} \frac{3\mu_0 m_i m_j}{4\pi r_{ij}^4} \{ & (\mathbf{d}_i \cdot \mathbf{d}_j) \hat{\mathbf{r}}_{ij} + \mathbf{d}_i (\mathbf{d}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij}) + \mathbf{d}_j (\mathbf{d}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij}) - \\ & 5(\mathbf{d}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\mathbf{d}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij}) \hat{\mathbf{r}}_{ij} \} + \mu_0 m_i \mathbf{d}_i \cdot \nabla \mathbf{H} . \end{aligned} \quad (6.36)$$

Como o campo aplicado é uniforme, o último termo da equação (6.36) é nulo. O torque magnético  $T_i^m$  agindo sobre a partícula  $i$  é dado por

$$\mathbf{T}_i^m = -\mathbf{d}_i \times \nabla_{\mathbf{d}_i} (U_i) , \quad (6.37)$$

resultando:

$$\begin{aligned} \mathbf{T}_i^m = - \sum_{j \neq i} \frac{\mu_0 m_i m_j}{4\pi r_{ij}^3} [ & (\mathbf{d}_i \times \mathbf{d}_j) - 3(\mathbf{d}_i \times \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\mathbf{d}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})] \} \\ & + \mu_0 m (\mathbf{d}_i \times \mathbf{H}) . \end{aligned} \quad (6.38)$$

Os deslocamentos estocásticos  $\Gamma_i^t$  e  $\Gamma_i^r$  são modelados por uma distribuição Gaussiana com média zero e covariância dada por

$$\langle \Gamma_i^t \Gamma_j^t \rangle = 2D_0^t \Delta t , \quad (6.39)$$

em que

$$D_0^t = \frac{kT}{3\pi\eta\sigma} \quad (6.40)$$

e

$$\langle \Gamma_i^r \Gamma_j^r \rangle = 2D_0^r \Delta t , \quad (6.41)$$

com

$$D_0^r = \frac{kT}{\pi\eta\sigma^3} . \quad (6.42)$$

Nas equações,  $D_0^t$  e  $D_0^r$  são coeficientes de difusão browniano de Stokes-Einstein translacional e rotacional, respectivamente.

A evolução temporal da suspensão é feita pela integração numérica das equações (6.32) e (6.33). Como discutido na seção (2.6) o tempo de relaxação inercial é muito menor que o tempo característico browniano e do escoamento. Assim os termos inerciais tanto na equação de translação quanto na de rotação podem ser desprezados, admitindo que a partícula encontra-se sempre com sua velocidade final. Considerando ainda que o tempo característico de sedimentação seja muito maior que o tempo browniano, a evolução temporal da suspensão é calculada utilizando-se o algoritmo do tipo Ermak-McCammon [72] de primeira ordem:

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \Delta \mathbf{r}_i \quad i = 1, 2, \dots, N \quad (6.43)$$

com

$$\Delta \mathbf{r}_i = r_i^y(t) \dot{\gamma} \Delta t \mathbf{e}_x + \frac{\mathbf{F}_i^m}{3\pi\eta\sigma} \Delta t + \mathbf{\Gamma}_i^t, \quad (6.44)$$

em que  $\dot{\gamma}$  é a taxa de cisalhamento. Como não são consideradas interações hidrodinâmicas, o movimento imposto ao fluido é aplicado diretamente no deslocamento da partícula. O cisalhamento é aplicado na direção  $x$  e  $r_i^y(t)$  é a componente na direção  $y$  do vetor posição da partícula  $i$ .

Para o vetor orientação  $\mathbf{d}_i$  da partícula  $i$  o algoritmo para a evolução temporal é dado por:

$$\mathbf{d}_i(t + \Delta t) = \mathbf{d}_i(t) + \Delta \mathbf{d}_i \quad i = 1, 2, \dots, N \quad (6.45)$$

com

$$\Delta \mathbf{d}_i = -\frac{1}{2} \dot{\gamma} \Delta t (\mathbf{e}_z \times \mathbf{d}_i(t)) + \frac{\mathbf{T}_i^m}{\pi\eta\sigma^3} \Delta t \times \mathbf{d}_i(t) + \mathbf{\Gamma}_i^r \times \mathbf{d}_i(t). \quad (6.46)$$

### 6.3.1 Adimensionalização

Para adimensionalizar as equações (6.43) e (6.45), a escala de comprimento utilizada é o diâmetro  $\sigma$ , a de tempo é  $\sigma^2/D_0^t$ , a de força  $kT/\sigma$  e a de torque  $kT$ . Assim, a versão adimensional da equação para o deslocamento translacional é:

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \Delta \mathbf{r}_i \quad (6.47)$$

com:

$$\Delta \mathbf{r}_i = (PeR_i^y) \Delta t \mathbf{e}_x + \sqrt{2\Delta t} \mathbf{n} + \mathbf{F}_i^{m*} \Delta t . \quad (6.48)$$

A equação para o deslocamento angular em sua versão adimensional é dada por:

$$\mathbf{d}_i(t + \Delta t) = \mathbf{d}_i(t) + \Delta \mathbf{d}_i \quad i = 1, 2, \dots, N \quad (6.49)$$

em que

$$\Delta \mathbf{d}_i = -\frac{1}{2} Pe \Delta t [\mathbf{e}_z \times \mathbf{d}_i(t)] + 3\Delta t [\mathbf{T}_i^{m*} \times \mathbf{d}_i(t)] + \sqrt{6\Delta t} \mathbf{n} \times \mathbf{d}_i(t) . \quad (6.50)$$

Na equação (6.50) o parâmetro adimensional Peclét rotacional  $Pe_R = \dot{\gamma}/D_0^r$  poderia ser usado no lugar de  $Pe$  (translacional). Porém  $Pe_R = Pe/3$ , ou seja, os dois parâmetros diferem entre si apenas por uma constante multiplicativa. Assim foi escolhido deixar  $Pe$  também para a parte rotacional.

### 6.3.2 Método da Mínima Imagem na Presença de Escoamento

O método da mínima imagem usado aqui é o mesmo descrito na subseção (6.2.1). Uma adaptação deve ser feita, no entanto, para o caso em que há cisalhamento simples, como mostra a figura (6.4). Para manter a coerência espacial, as partículas da célula superior devem possuir uma velocidade superior às partículas da célula central. Assim toda a célula se desloca com velocidade igual a  $\dot{\gamma}L$  para a direita. A célula abaixo da célula central se desloca com a mesma velocidade para a esquerda. Portanto a velocidade da imagem da partícula 1 em uma célula acima da célula central é igual à velocidade da partícula principal acrescida de  $\dot{\gamma}L$ , devido ao cisalhamento simples.

No caso da Dinâmica de Langevin são usadas explicitamente as forças e os torques magnéticos. A força utilizada na equação (6.32) é dada por (6.36) e o torque utilizado em (6.33) é dado por (6.38). Na forma adimensional, a força e o torque são dados, respectivamente, por:

$$\mathbf{F}_i^{m*} = \lambda \sum_{j \neq i} \frac{1}{r_{ij}^4} \{3 [(\mathbf{d}_i \cdot \mathbf{d}_j) \hat{\mathbf{r}}_{ij} + \mathbf{d}_i (\mathbf{d}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij}) + \mathbf{d}_j (\mathbf{d}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})] - 15 [(\mathbf{d}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\mathbf{d}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij}) \hat{\mathbf{r}}_{ij}] \} \quad (6.51)$$

e

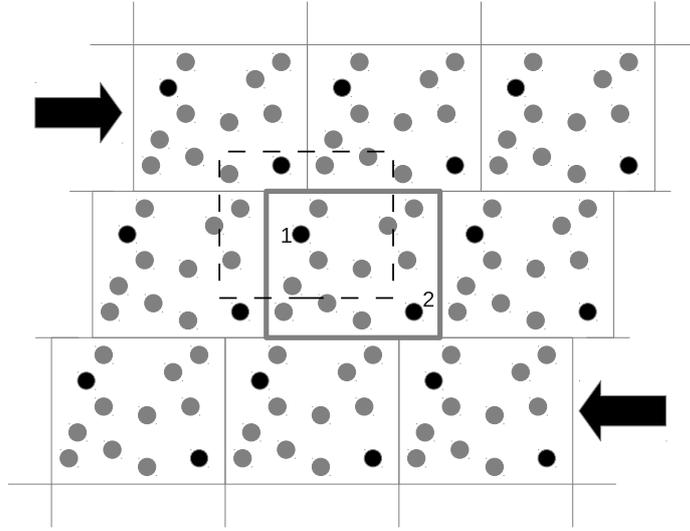


Figura 6.4: Esquema da convenção da Mínima Imagem, mostrando a célula central e as suas imagens, quando há cisalhamento.

$$\mathbf{T}_i^{m*} = -\lambda \sum_{j \neq i} \left\{ \frac{1}{r_{ij}^3} [(\mathbf{d}_i \times \mathbf{d}_j) - 3(\mathbf{d}_i \times \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\mathbf{d}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})] \right\} + \alpha \mathbf{d}_i \times \hat{\mathbf{H}} . \quad (6.52)$$

As partículas, então, interagem com as  $N - 1$  partículas ou imagens que estão mais próximas em sua vizinhança.

### 6.3.3 Somas de Ewald em Espaços Periódicos

Agora o método baseado em Dinâmica de Langevin é utilizado com somas de Ewald em espaços (domínios) periódicos. A metodologia de somas de lattice de Ewald é descrita na seção (6.2.2). A força magnética adimensionalizada é dada pelo gradiente do potencial energético descrito na equação (6.30). Essa força pode ser dividida em duas parcelas, sendo uma do espaço real e a outra do espaço recíproco [62]:

$$\mathbf{F}_i^m = \mathbf{F}_i^r + \mathbf{F}_i^k \quad (6.53)$$

com

$$\begin{aligned} \mathbf{F}_i^r = \lambda \sum_{j=1}^N \sum'_{\mathbf{n} \in \mathbb{Z}^3} \left\{ \{(\mathbf{d}_i \cdot \mathbf{d}_j)(\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}) + \mathbf{d}_i[\mathbf{d}_j \cdot (\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n})] \right. \\ \left. + [\mathbf{d}_i \cdot (\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n})]\mathbf{d}_j\} C(|\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|) - [\mathbf{d}_i \cdot (\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n})] \right. \\ \left. \times [\mathbf{d}_j \cdot (\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n})] D(|\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|)(\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}) \right\} \end{aligned} \quad (6.54)$$

e

$$\mathbf{F}_i^k = \frac{2\pi}{L^4} \sum_{j=1}^N \sum_{\mathbf{k} \in \mathbb{Z}^3, \mathbf{k} \neq \mathbf{0}} \frac{4\pi\mathbf{k}}{k^2} (\mathbf{d}_i \cdot \mathbf{k})(\mathbf{d}_j \cdot \mathbf{k}) e^{-(k/2L)^2} \sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij}) , \quad (6.55)$$

em que  $C(r)$  é definido em (6.29) e  $D(r)$  é dado por:

$$D(r) = [15\text{erfc}(\xi r) + (2\xi r/\sqrt{\pi})(15 + 10\xi^2 r^2 + 4\xi^4 r^4)\exp(-\xi^2 r^2)]/r^7 . \quad (6.56)$$

As funções  $C(r)$  e  $D(r)$  podem ser definidas como funções de Green referentes às interações dipolares de longo alcance no espaço físico. Como é usado um potencial de esferas rígidas (equação 6.4) para a interação de curto alcance, não aparece explicitamente uma força repulsiva de curto alcance. As colisões entre as partículas são puramente elásticas.

O torque é dado pela equação (6.37), com o potencial magnético de interação dado pela equação (6.30). O torque pode ser dividido em uma parcela devido às interações entre as partículas no espaço real, uma parcela devido interações entre as partículas no espaço recíproco e uma parcela da interação entre a partícula  $i$  e o campo magnético:

$$\mathbf{T}_i^m = \mathbf{T}_i^r + \mathbf{T}_i^k + \mathbf{T}_i^f , \quad (6.57)$$

com os termos  $\mathbf{T}_i^r$ ,  $\mathbf{T}_i^k$  e  $\mathbf{T}_i^f$  calculados conforme segue [62] :

$$\mathbf{T}_i^r = -\lambda \sum_{j=1}^N \sum'_{\mathbf{n} \in \mathbb{Z}^3} \{(\mathbf{d}_i \times \mathbf{d}_j)B(|\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|) - [\mathbf{d}_i \times (\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n})][\mathbf{d}_j \cdot (\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n})]C(|\mathbf{r}_{ij} + \mathbf{n}|)\} \quad (6.58)$$

$$\mathbf{T}_i^k = -\frac{\lambda}{L^3} \sum_{j=1}^N \sum_{\mathbf{n} \in \mathbb{Z}^3, \mathbf{k} \neq \mathbf{0}} \frac{4\pi}{k^2} (\mathbf{d}_i \times \mathbf{k})(\mathbf{d}_j \cdot \mathbf{k}) e^{-(k/2\xi)^2} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_{ij}} \quad (6.59)$$

e

$$\mathbf{T}_i^f = \alpha \mathbf{d}_i \times \hat{\mathbf{H}} . \quad (6.60)$$

Finalmente vale notar que não aparece o termo  $\mathbf{F}_i^f$ , referente à força exercida pelo campo magnético externo aplicado, na equação (6.53) tendo em vista que o campo é uniforme. Os termos referentes à força de superfície não são explicitados porque é considerada uma fronteira metálica ( $\epsilon' = \infty$ ), fazendo com que essas parcelas sejam nulas. Os parâmetros utilizados, como  $\xi$ ,  $\mathbf{n}$  e  $\mathbf{k}$ , são apresentados na subseção (6.2.2). A parcela na força magnética devido a interação da partícula com sua própria imagem (relativa a  $U_i^{self}$ ) é nula porque a energia não depende da posição da partícula.

## 6.4 GERAÇÃO DA CONDIÇÃO INICIAL

Para iniciar as simulações com os métodos de Monte Carlo e Dinâmica de Langevin é necessário gerar uma configuração inicial para evoluir o sistema a partir desta. Para a posição  $\mathbf{r}$  das partículas são gerados  $3N$  números aleatórios no intervalo  $(0, L/\sigma)$ , correspondendo às 3 componentes do vetor posição de cada partícula. Como a fração volumétrica máxima utilizada nas simulações é  $\phi = 0,15$ , um método simples foi utilizado. Após gerados os números aleatórios, verifica-se se há sobreposição de partículas. Em caso negativo, a configuração é aceita. Quando existe sobreposição, uma das partículas envolvidas é deslocada aleatoriamente. Para isso são gerados mais 3 números aleatórios no intervalo  $(-1, 1)$ . Cada um desses números é adicionado a uma componente da posição original da partícula, conferindo-se sempre se este vetor posição se encontra dentro do intervalo  $(0, L/\sigma)$ . Verifica-se novamente se há sobreposição de partículas. Esse processo é repetido até que não hajam mais sobreposições e então é gerada a configuração inicial de posições das partículas.

Para gerar a condição inicial aleatória dos vetores unitários de momento de dipolo  $\hat{\mathbf{d}}$  foi usado o método de aceitação-rejeição de von Neumann [73]. O método para gerar um vetor unitário aleatório é dado por [4]:

1. São gerados 3 número aleatórios  $\varepsilon_1$ ,  $\varepsilon_2$  e  $\varepsilon_3$  no intervalo  $(0, 1)$ .
2. Calcula-se  $d_i = 1 - 2\varepsilon_i$ , para  $i = 1, 3$ .
3. É calculada a soma  $d^2 = d_1^2 + d_2^2 + d_3^2$ .
4. Se  $d^2 < 1$ , então o vetor resultante é dado por  $\hat{\mathbf{d}} = (d_1/d)\mathbf{e}_1 + (d_2/d)\mathbf{e}_2 + (d_3/d)\mathbf{e}_3$ .
5. Se  $d^2 > 1$  o vetor é rejeitado e volta-se ao passo 1.

Esse processo é repetido  $N$  vezes para que sejam criados os vetores correspondentes à cada partícula.

A configuração inicial é gerada em uma rotina separada da rotina principal de evolução da suspensão. Quando é iniciada a evolução é ainda conferido se não há sobreposição de partículas, se os vetores posição se encontram no intervalo  $(0, L/\sigma)$  e se os vetores momento de dipolo associados às partículas são unitários. Caso alguma dessas premissas seja descumprida a evolução é abortada, isto é, a simulação para.

## 6.5 FUNÇÃO DE DISTRIBUIÇÃO RADIAL

As interações dipolares entre as partículas afetam de maneira significativa a estrutura do fluido magnético, tendo consequências no seu comportamento macroscópico. A mudança pode ser observada na formação de cadeias de partículas e de pequenos aglomerados. Para quantificar essa alteração é utilizada a função de distribuição radial  $g(r)$ . Essa função tem grande importância no estudo de suspensões porque com a mesma é possível calcular as propriedades termodinâmicas macroscópicas e também analisar a microestrutura de fluidos complexos [74].

A função de distribuição radial no equilíbrio é definida como [46]:

$$g(r) = g(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{N(N-1)}{\rho^2 Z_N} \int d\mathbf{r}_3 d\mathbf{r}_4 \cdots d\mathbf{r}_N \exp(-U/kT), \quad (6.61)$$

em que  $U$  é a energia potencial total,  $\rho = N/V$  é o número de densidade e  $Z_N$  é a integral configuracional dada por:

$$Z_N = \int d\mathbf{r} \exp(-U/kT). \quad (6.62)$$

Uma forma equivalente de definição usada para calcular numericamente  $g(r)$  é dada pela média de conjunto sobre pares [4]:

$$g(r) = \frac{V}{N^2} \left\langle \sum_i \sum_{j \neq i} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{ij}) \right\rangle. \quad (6.63)$$

A função  $g(r)$  fornece a probabilidade de se encontrar um par de partículas separadas por uma distância  $r$  comparada à mesma probabilidade em uma distribuição completamente aleatória (gás ideal). O termo  $4\pi r^2 N g(r)/V$  denota o número de partículas que podem ser encontradas entre  $r$  e  $r + dr$ , considerando a origem no centro de uma partícula da configuração. No caso da simulação de uma suspensão magnética (partículas com interação

dipolar), em equilíbrio, quando é aplicado um campo magnético o sistema é axissimétrico com eixo de simetria definido pela direção  $\hat{\mathbf{H}} = \mathbf{H}/H$  do campo magnético externo. Assim, a função passa a depender também de  $\theta$ , que é o ângulo entre  $\mathbf{r}$  e  $\hat{\mathbf{H}}$ . A função  $g(r, \theta)$  pode ser expandida em polinômios de Legendre:

$$g(r, \theta) = g_0(r) + \sum_{n=1}^{\infty} g_n(r) P_n(\cos\theta) . \quad (6.64)$$

Aqui os coeficientes  $g_n(r)$  são dados por:

$$g_n(r) = \frac{2n+1}{2} \int_0^\pi P_n(\cos\theta) g(r, \theta) \sin\theta d\theta , \quad n = 1, 2, \dots . \quad (6.65)$$

Nas equações (6.64) e (6.65)  $P_n$  é o polinômio de Legendre de grau  $n$ . No equilíbrio e na ausência de campo magnético, as funções  $g_n(r)$  para  $n \geq 1$  se anulam e  $g(r, \theta) = g_0(r)$ , correspondendo à função dada pela equação (6.61) para o caso isotrópico.

Para calcular numericamente a função  $g(r)$  para o caso axissimétrico em equilíbrio considera-se uma casca esférica entre  $r - \varepsilon$  e  $r + \varepsilon$  e calcula-se quantas partículas possuem seus centros nesse volume em um dado instante de tempo (ver apêndice I). Tem-se, então:

$$g_n(r) = \left( \frac{2n+1}{2} \right) \frac{1}{2\pi} \frac{1}{\Omega(r, \varepsilon)} \frac{V}{N^2} \sum'_{i,j} \Theta(\varepsilon - |r_{ij} - r|) P_n(\cos\theta_{ij}) . \quad (6.66)$$

Considerando o caso para  $n = 0$ :

$$g_0(r) = \frac{1}{4\pi} \frac{1}{\Omega(r, \varepsilon)} \frac{V}{N^2} \sum'_{i,j} \Theta(\varepsilon - |r_{ij} - r|) . \quad (6.67)$$

A função  $g_0(r)$  na equação (6.67) é a própria  $g(r)$  para o caso isotrópico. O termo  $\Omega(r, \varepsilon)$  é dado por

$$\Omega(r, \varepsilon) = \int_{r-\varepsilon}^{r+\varepsilon} r^2 dr = \frac{1}{3} [(r + \varepsilon)^3 - (r - \varepsilon)^3] \quad (6.68)$$

e

$$\Theta(\varepsilon - |r_{ij} - r|) = \int_{r_m - \varepsilon}^{r_m + \varepsilon} \delta(r - r_{ij}) \quad (6.69)$$

é a função Heavside ou função degrau, que vale 1 se  $R_{ij} \in (r_m - \varepsilon, r_m + \varepsilon]$  e 0 caso contrário.

A partir da função  $g(\mathbf{r})$  é possível ainda definir o fator de estrutura  $S(\mathbf{k})$  como [75, 76]:

$$S(\mathbf{k}) = \int g(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} , \quad (6.70)$$

ou seja, o fator de estrutura  $S(\mathbf{k})$  é obtido a partir da transformada de Fourier da função de correlação  $g(\mathbf{r})$ . Na equação (6.70)  $\mathbf{k}$  é o número de onda no espaço de Fourier. A importância do fator de estrutura  $S(\mathbf{k})$  se dá pela possibilidade de sua obtenção diretamente de experimentos de dispersão de luz [77].

# Capítulo 7

## Resultados Numéricos

Neste capítulo são apresentados resultados de simulações numéricas de uma suspensão magnética na presença de campo magnético, campo de cisalhamento e interações magnéticas dipolares. Os métodos de simulação utilizados foram apresentados no capítulo anterior e são: Monte Carlo com Mínima Imagem (MC), Monte Carlo com Somas de Ewald (PMC), Dinâmica de Langevin com Mínima Imagem (LD) e Dinâmica de Langevin com Somas de Ewald (PLD).

### 7.1 TESTES PRELIMINARES

Para realizar as simulações e determinar propriedades macroscópicas da suspensão magnética e examinar a dependência dessas propriedades com parâmetros como  $\alpha$  e  $Pe$  é necessário definir algumas variáveis das simulações numéricas, como o número de partículas  $N$  a ser utilizado, o número total de passos da simulação  $t_T$  e o passo de tempo  $\Delta t$  para o método da Dinâmica de Langevin ou o  $\delta r_{max}$  e  $\delta(d)_{max}$  para o método de Monte Carlo.

Para o método de Monte Carlo foi definido  $\delta r_{max} = \delta(d)_{max} = 0,3$ . Com esses valores foi obtida uma taxa de aceitação de cerca de 30%. O passo de tempo  $\Delta t$  para a simulação com Dinâmica de Langevin é obtido por comparações com os parâmetros adimensionais apresentados na seção (2.6). Esses parâmetros podem ser interpretados como escalas de tempo características de determinada força adimensionalizadas pelo tempo browniano. O passo de tempo adimensional  $\Delta t$  deve ser menor que os tempos adimensionais relacionados aos fenômenos presentes: o cisalhamento ( $1/Pe$ ), a interação partícula-campo ( $1/\alpha$ ), a interação partícula-partícula ( $1/\lambda$ ) e o movimento browniano (1). Assim, considerando que  $\Delta t$  já é adimensionalizado pelo tempo browniano, temos:

$$\Delta t = \min(10^{-3}, 10^{-1}Pe^{-1}, 10^{-1}\alpha^{-1}, 10^{-1}\lambda^{-1}). \quad (7.1)$$

Neste trabalho a primeira condição da equação (7.1) domina todas as outras. Portanto, o passo de tempo nas simulações de Dinâmica de Langevin é  $\Delta t = 10^{-3}$  em todas as situações.

No início de cada simulação as partículas possuem posições espaciais e orientações dos momentos de dipolo aleatórias, resultando em uma magnetização aproximadamente nula. A partir desta configuração inicial o sistema é evoluído no tempo, no caso das simulações baseadas em Dinâmica de Langevin, ou no espaço de configurações, no caso de simulações tipo Monte Carlo. É necessário garantir que a simulação já tenha atingido um regime permanente para, a partir deste ponto, considerar o cálculo das médias que irão determinar as propriedades macroscópicas da suspensão. Além disso, é preciso definir um número mínimo de partículas no sistema para garantir que a célula da simulação e suas imagens espelhadas possam representar alguma propriedade macroscópica do fluido. Tanto  $N$  quanto  $t_T$  não podem ser extremamente grandes ( $N \sim 10^5$  e  $t_T \sim 10^6$ , por exemplo), o que seria ideal para o cômputo das propriedades estatísticas do problema. Isso tornaria o tempo de simulação impraticável. Assim é necessário encontrar um equilíbrio entre valores de  $N$  e de  $t_T$  que possibilite caracterização estatística significativa e representativa e ao mesmo tempo custos computacionais convenientes.

A magnetização da suspensão magnética foi a propriedade macroscópica examinada para se determinar a dependência das simulações com o número de passos e com o número de partículas. Primeiramente foi feito um estudo da magnetização da suspensão magnética em função do número de partículas  $N$  simuladas, conforme mostra a figura (7.1). Neste teste foi utilizado o método PMC e os parâmetros foram escolhidos de maneira a configurar uma situação extrema na simulação. Na figura (7.1):  $\alpha = 1$ ,  $\phi = 0,15$  e  $\lambda = 4$ . A maioria dos resultados subsequentes apresenta frações volumétricas de partícula e parâmetro de intensidade de interação entre os dipolos  $\lambda$  menores que esses valores. Foram simuladas até 1024 partículas, mas nota-se que com 256 partículas já identifica-se uma excelente convergência do valor da magnetização do fluido magnético. Em adição, a figura (7.2) apresenta o resultado da convergência do desvio padrão dos pontos da figura (7.1). Nota-se que o valor do desvio padrão da magnetização quando simuladas 256 partículas é próximo ao valor do desvio quando  $N = 1024$ . Com  $N = 256$  o desvio padrão representa 2,9% do valor médio para esse caso, enquanto com  $N = 1024$  o desvio padrão é de 2,5% do valor médio. Com base nos resultados das figuras (7.1) e (7.2) decidiu-se fixar o número de partículas em 256 na simulações. Esse valor mostrou boa convergência da magnetização e possui um custo computacional muito menor comparado às simulações com  $N = 512$  ou  $N = 1024$ .

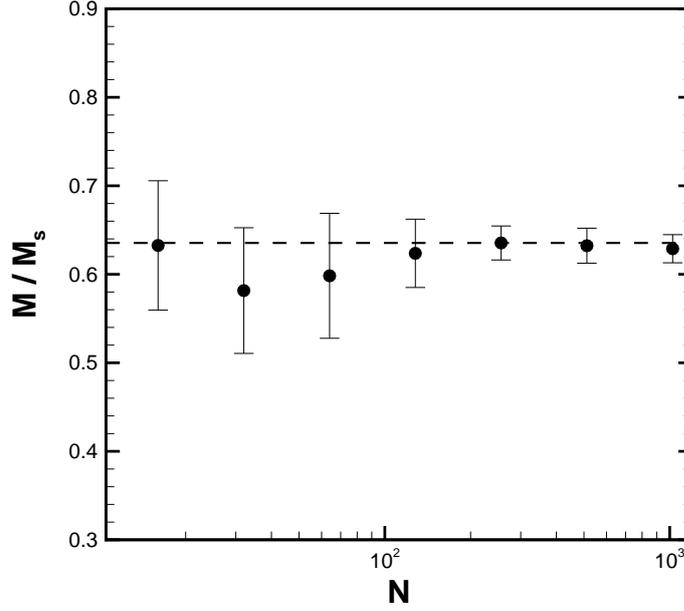


Figura 7.1: Magnetização adimensional média da suspensão magnética em função do número de partículas  $N$  para  $\alpha = 1$ ,  $\lambda = 4$  e  $\phi = 0,15$  usando PMC. Os valores de  $N$  são: 16, 32, 64, 128, 256, 512 e 1024. O valor encontrado para  $N = 256$  foi de  $0,635 \pm 0,019$  e para  $N = 1024$  foi de  $0,629 \pm 0,016$ . A linha tracejada vertical passa pelo ponto correspondente a  $N = 256$ .

A figura (7.3) mostra a célula principal em uma configuração de partículas e respectivos momentos de dipolo no final de uma simulação com  $\alpha = 1$ ,  $\lambda = 4$ ,  $\phi = 0,15$  e  $N = 256$ . A célula é cúbica e o lado  $L$  é calculado por:

$$\frac{L}{\sigma} = \left( \frac{N \pi}{6 \phi} \right)^{1/3}, \quad (7.2)$$

já que, para simplificar a rotina numérica, o diâmetro de partícula  $\sigma$  foi usado como dimensão característica. As setas representam os vetores momento de dipolo, que estão fixos no centro de cada partícula. As partículas interagem entre si e com partículas virtuais em imagens espelhadas da célula central, como enfatizado no capítulo anterior.

O resultado de uma análise da dependência da magnetização com o número de passos da simulação é apresentado na figura (7.4). Utilizou-se o método *PMC* com  $\alpha = 1$ ,  $\lambda = 2$  e  $\phi = 0,1$  para o número já estabelecido de 256 partículas. A magnetização em cada passo é calculada como:

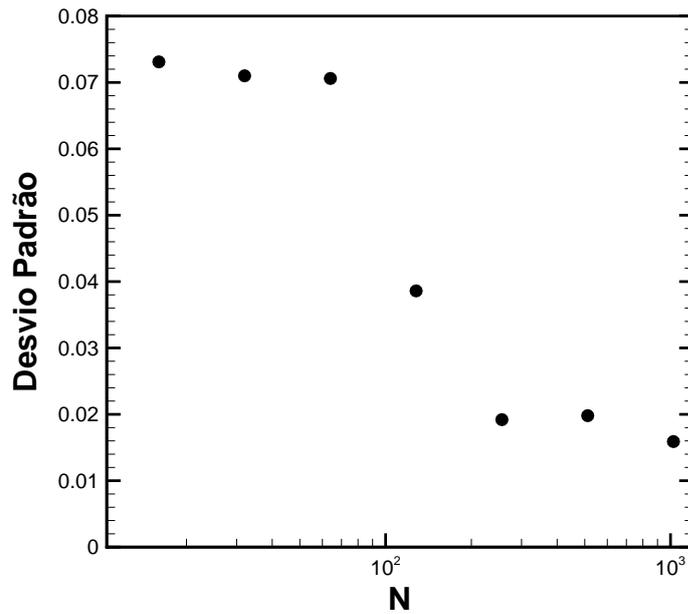


Figura 7.2: Desvio padrão da magnetização adimensional da suspensão magnética em função do número de partículas  $N$  para  $\alpha = 1$ ,  $\lambda = 4$  e  $\phi = 0,15$  usando PMC. Os valores de  $N$  são: 16, 32, 64, 128, 256, 512 e 1024.

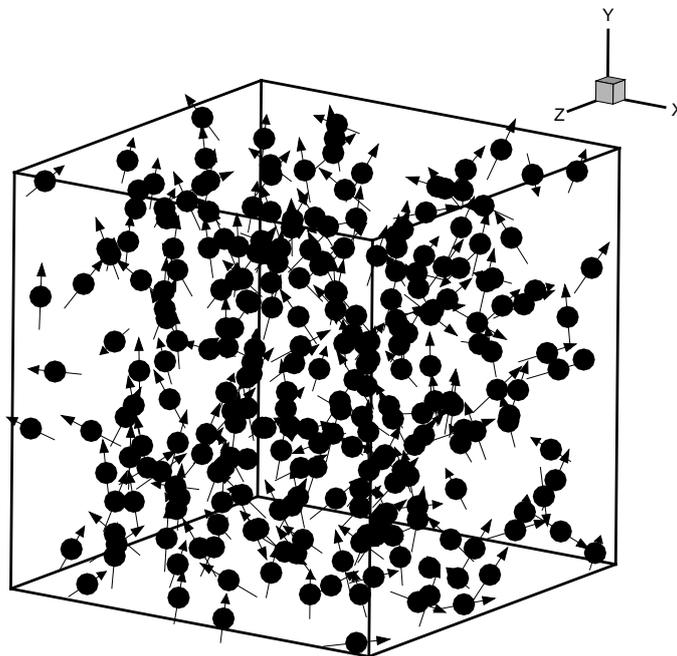


Figura 7.3: Configuração de partículas e respectivos dipolos na célula principal da simulação para  $\alpha = 1$ ,  $\lambda = 4$  e  $\phi = 0,15$  com  $N = 256$  usando PMC. As setas indicam a direção do vetor momento de dipolo que é fixo no centro de cada partícula. O campo magnético é aplicado na direção  $y$ .

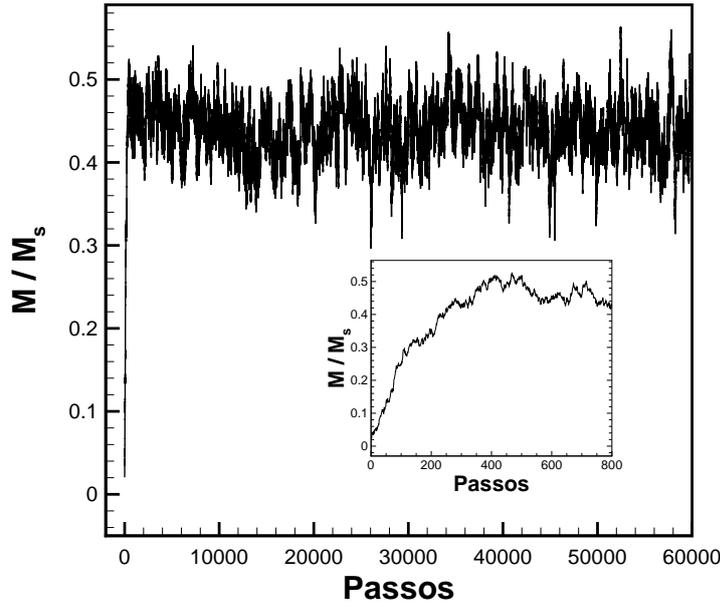


Figura 7.4: Magnetização adimensional em função do número de passos usando PMC para  $\alpha = 1$ ,  $\lambda = 2$ ,  $\phi = 0,1$  e  $N = 256$ . A média é 0,44. No encarte é mostrada a magnetização no início da simulação.

$$\frac{M_{passo}}{M_s} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\hat{\mathbf{H}} \cdot \mathbf{d}_i) , \quad (7.3)$$

em que  $\hat{\mathbf{H}}$  é o vetor unitário na direção do campo magnético aplicado  $\mathbf{H}$ .

No encarte da figura (7.4) é mostrado o início da simulação, em que a magnetização inicial possui um valor próximo a zero, tendo em vista que as partículas possuem orientação de dipolo inicial aleatória. No entanto a magnetização adimensional final converge para uma média em torno de 0,44. No método de Monte Carlo o sistema não é evoluído no tempo, mas sim no espaço de configurações. Uma maneira de contabilizar a evolução do sistema é pelo número de passos. É considerado que houve um passo a cada  $N$  vezes que as partículas tiveram suas posições ou orientações alteradas. Assim, para este caso, um passo equivale a 256 movimentos.

A figura (7.5) mostra como foi determinada a magnetização e o seu desvio padrão a partir da figura (7.4). O resultado é dividido em 11 partes. A primeira parte, com 10000 passos, é para garantir a convergência do sistema, não sendo utilizada no cálculo das propriedades. As outras 10 partes, com 5000 passos cada, são tratadas como simulações independentes. Estas são sobrepostas ao longo do número de passos e é calculada uma média e um desvio padrão em cada um dos 5000 passos. A figura (7.5) apresenta o valor

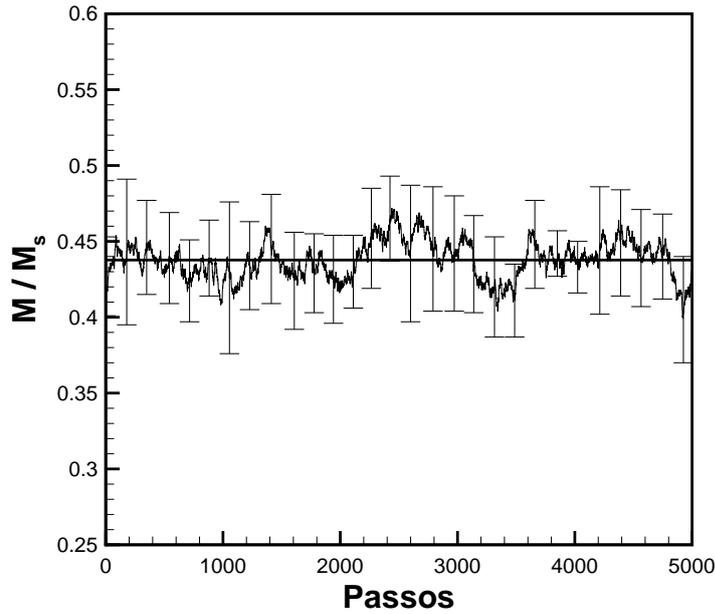


Figura 7.5: Média temporal para o mesmo caso da figura (7.5), mostrando como é calculado o valor final da magnetização e o desvio padrão associado. A linha cheia representa a média final, que foi de 0,44. O desvio padrão foi de 0,03 neste caso.

dessa média. Esse procedimento é feito com o objetivo de diminuir o ruído branco causado pelo movimento browniano. A média e o desvio padrão finais são calculados com essa média ao longo dos 5000 passos, como uma média temporal, resultando no valor final da magnetização. Neste caso o valor encontrado para  $M/M_S$  foi de  $0,44 \pm 0,03$ . Os resultados médios apresentados nas próximas seções foram obtidos utilizando essa metodologia, mesmo quando outras propriedades do fluido são investigadas, com exceção de alguns casos com PLD, em que foram usados números menores de passos devido ao alto custo computacional.

Os resultados da figura (7.6) foram obtidos com os mesmos parâmetros usados na figura (7.4). A linha preta representa a evolução da magnetização de um sistema que foi iniciado com orientação aleatória dos vetores dos momentos de dipolo, ou seja, com magnetização próxima a zero. Já a linha vermelha representa um sistema que começou com as partículas totalmente orientadas na direção do campo magnético, levando a uma magnetização adimensional inicial unitária,  $M = M_s$ . Nota-se na figura (7.6) que a condição inicial de orientação das partículas não interfere no valor obtido da magnetização média, já que a magnetização converge em ambos os casos para um mesmo valor após um número suficiente de passos necessários para a relaxação dos momentos de dipolo. Portanto conclui-se que a magnetização média final é independente da condição inicial de orientação dos dipolos das partículas.

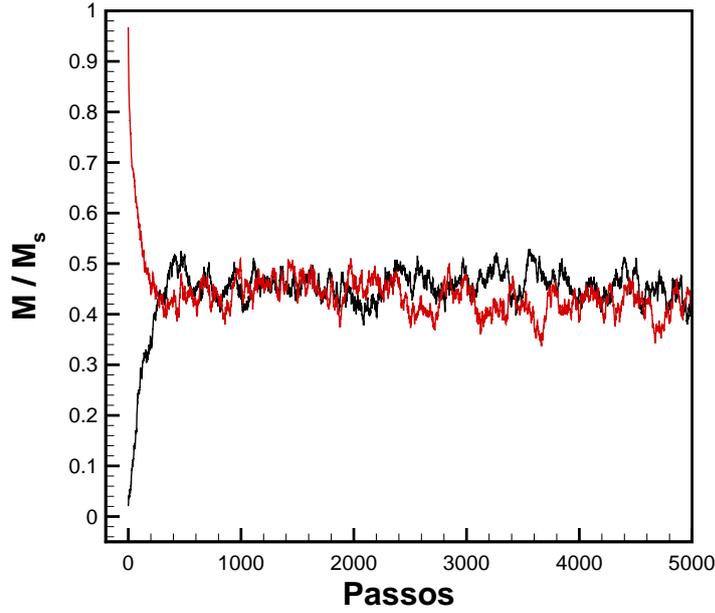


Figura 7.6: Magnetização adimensional em função do número de passos usando PMC com  $\alpha = 1$ ,  $\lambda = 2$ ,  $\phi = 0,1$  e  $N = 256$ . A linha preta representa uma suspensão com partículas cuja orientação inicial é aleatória. A linha vermelha representa uma suspensão com orientação inicial dos momentos de dipolo das partículas coincidentes com o campo magnético.

A figura (7.7) mostra a evolução de uma simulação usando PLD com  $\alpha = 1$ ,  $\lambda = 2$ ,  $Pe = 5$ ,  $\phi = 0,1$  e  $N = 256$ . Foi utilizado  $\Delta t = 10^{-3}$  e 60000 passos, fazendo com que o sistema evolua até  $t = 60$ . Nota-se que a magnetização converge, aproximadamente, com  $t = 1$ . Para calcular a média e o desvio padrão é utilizado o mesmo procedimento descrito para o método Monte Carlo, exceto que neste caso a média é temporal e não tomada em cima de um espaço de configurações. Contudo os cálculos são equivalentes.

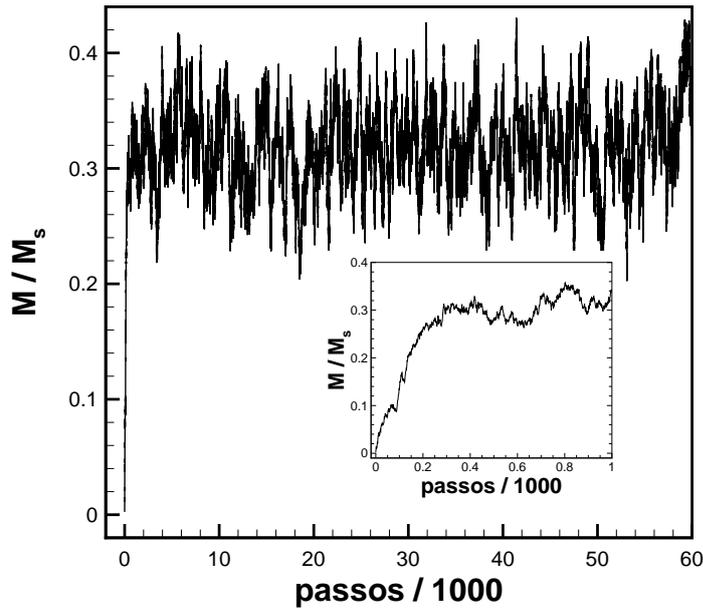


Figura 7.7: Magnetização em função do número de passos usando PLD com  $\alpha = 1$ ,  $\lambda = 2$ ,  $Pe = 5$ ,  $\phi = 0,1$  e  $N = 256$ . A média é de 0,32. No encarte é mostrada a magnetização no início da simulação.

## 7.2 MAGNETIZAÇÃO DE EQUILÍBRIO

Nesta seção é analisada a magnetização e a estrutura dos fluidos magnéticos em equilíbrio ( $Pe = 0$ ). A figura (7.8) mostra a magnetização em função de  $\alpha$  para  $\phi = 0,15$  e  $\lambda = 2$ . Os pontos foram obtidos utilizando-se os 4 métodos de simulação propostos: Monte Carlo com Mínima Imagem (MC), Monte Carlo com Somas de Ewald (PMC), Dinâmica de Langevin com Mínima Imagem (LD) e Dinâmica de Langevin com Somas de Ewald (PLD). Nota-se que quando é utilizado o método da Mínima Imagem a magnetização encontrada difere consideravelmente do valor encontrado quando são utilizadas Somas de Ewald para  $\alpha < 10$ . Esse resultado também foi obtido por Chantrell [78] e por Chantrell et al. [79]. Este é o intervalo em que as interações entre os dipolos é comparável à interação entre as partículas e o campo magnético. Para  $\alpha = 1$ , por exemplo, a magnetização calculada com Mínima Imagem é metade da obtida com Somas de Ewald, sendo inferior inclusive ao valor da função de Langevin, que não considera interações entre as partículas. Ou seja, essas interações dipolares de longo alcance não são bem representadas em sistemas não-diluídos finitos, levando até a uma diminuição da magnetização. Os resultados obtidos com PMC e PLD são muito próximos e concordam com o modelo de Ivanov-Kuznetsova. Esses resultados mostram que as interações dipolares levam a um aumento na magnetização, já que há forte

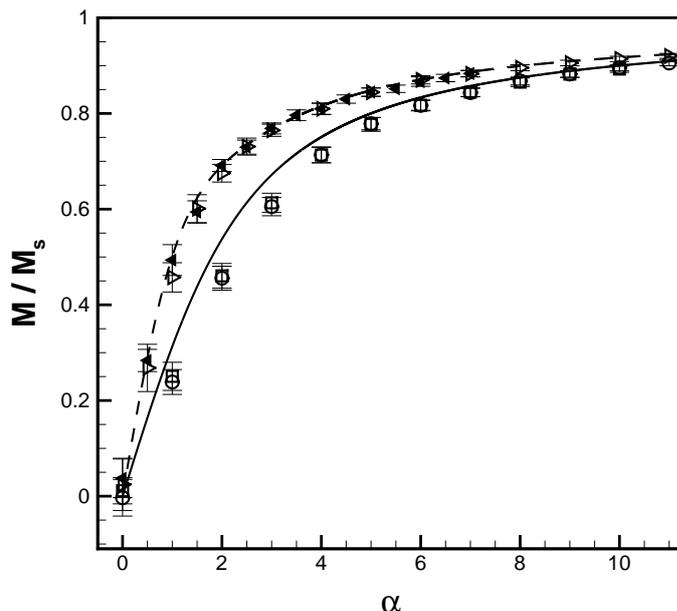


Figura 7.8: Magnetização adimensional em função de  $\alpha$  com  $\phi = 0,15$  e  $\lambda = 2$ . Na figura:  $\circ$  MC,  $\square$  LD,  $\triangleright$  PMC e  $\blacktriangleleft$  PLD. A linha cheia representa a função de Langevin dada por (3.1) e a tracejada o modelo de Ivanov-Kuznetsova, dado pela equação (3.4).

tendência de formação de cadeias na direção do campo, o que intensifica essa força de alinhamento.

No entanto, as simulações que usam o método da Mínima Imagem são mais simples e possuem um custo consideravelmente menor que as com Somas de Ewald. Para comparação, um caso simulado usando LD demora cerca de 300 segundos, enquanto o mesmo caso demora cerca de 122000 segundos para ser simulado usando PLD. O que leva a um erro na hora de utilizar a Mínima Imagem é o fato de as interações dipolares serem de longo alcance, tornando o tamanho do box insuficiente. Assim, quando as interações dipolares puderem ser desprezadas ou possuírem pouca importância relativa às forças de interação das partículas com o campo magnético e as forças brownianas, a simulação com Mínima Imagem é mais vantajosa. Isso acontece em fluidos diluídos e para  $\lambda$  menor ou em torno da unidade. Como muitas aplicações envolvem fluidos magnéticos com frações volumétricas em torno de 1% e também  $\lambda \approx 1$  (ver capítulo 5), essa é uma condição razoável para se assumir.

Nesta seção é realizado um estudo para investigar em que situações a utilização do método de Mínima Imagem leva a erros aceitáveis quando comparado ao método de Somas de Ewald, tornando o primeiro mais vantajoso em termos de custo computacional.

Na figura (7.9) os pontos representam a magnetização de equilíbrio em função da fração volumétrica para  $\alpha = 1$  e  $\lambda = 1$ , usando os métodos MC, LD, PMC e PLD. A linha

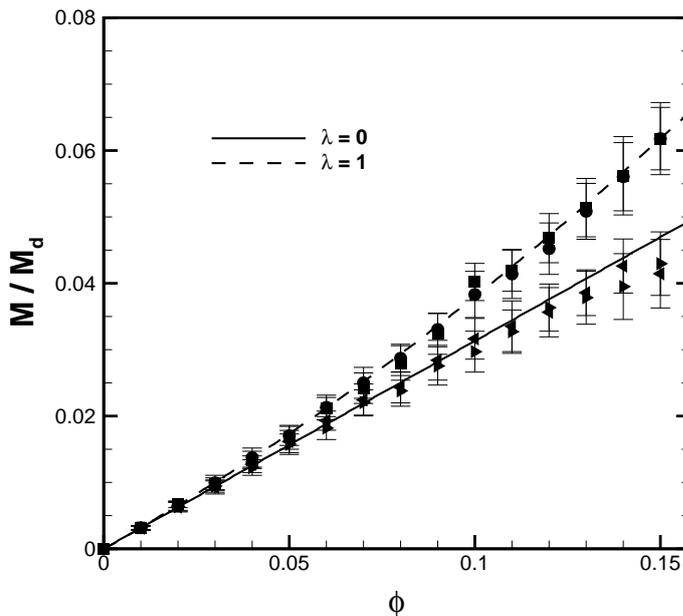


Figura 7.9: Magnetização adimensional em função da fração volumétrica  $\phi$  com  $\alpha = 1$  e  $\lambda = 1$ . As linhas representam o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos numéricos. Na figura: ● PMC, ■ PLD, ► MC e ◄ LD.

tracejada mostra o modelo de Ivanov-Kuznetsova, equação (3.4), e a linha cheia o modelo de Langevin, equação (3.1), que é o modelo de Ivanov-Kuznetsova com  $\lambda = 0$ . Nota-se grande concordância entre os resultados obtidos com PMC, PLD e Ivanov-Kuznetsova em toda a faixa de frações volumétricas considerada. Para a figura (7.10), com  $\lambda = 2$ , nota-se que a magnetização para os modelos MC e LD é menor que a predita pela função de Langevin para altas concentrações, como já visto na figura (7.8). Ou seja, a interação magnética dipolar entre as partículas produz uma atenuação na magnetização em simulações com o método da Mínima Imagem.

As figuras (7.11) e (7.12) mostram os detalhes das figuras (7.9) e (7.10), respectivamente, para baixas frações volumétricas. Nota-se que até  $\phi = 0,05$  com  $\lambda = 1$  e até  $\phi = 0,03$  com  $\lambda = 2$ , os valores encontrados de magnetização são iguais se forem consideradas as barras de erro, ou seja, os resultados com Mínima Imagem coincidem com o das Somas de Ewald se for levado em conta o desvio padrão. Isso acontece pois nesse caso as interações entre os dipolos magnéticos ainda são pequenas quando comparadas com as interações das partículas com o campo magnético tendo em vista que a suspensão é semi-diluída e as partículas, estando mais separadas umas das outras, interagem apenas com as vizinhas mais próximas. Em outras palavras, as flutuações no movimento de uma partícula teste produzidas por interações dipolares são pequenas comparadas às variações de velocidade

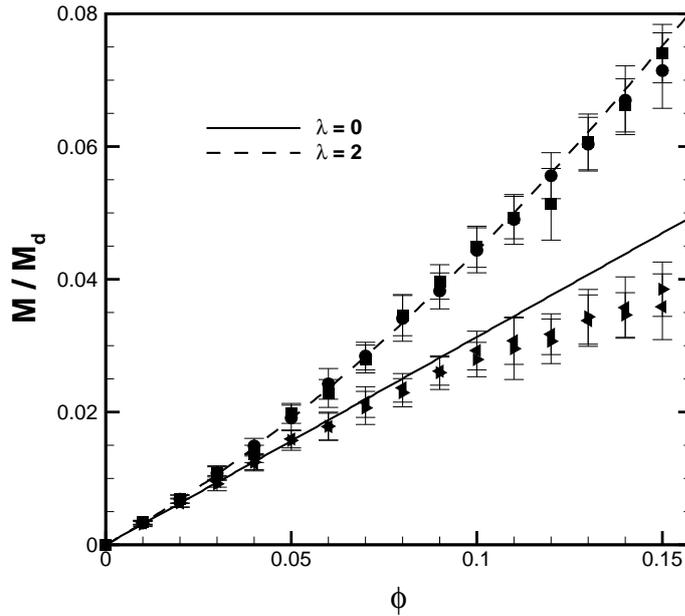


Figura 7.10: Magnetização adimensional em função da concentração volumétrica  $\phi$  com  $\alpha = 1$  e  $\lambda = 2$ . As linhas representam o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos numéricos. Na figura: ● PMC, ■ PLD, ► MC e ◄ LD.

produzidas pelo campo magnético. As tabelas (7.1) e (7.2) mostram os resultados relativos dos gráficos das figuras (7.11) e (7.12), respectivamente. Nestas tabelas é colocado o valor da magnetização calculado com *PMC* e a diferença entre esse valor e os valores obtidos com *MC* e *LD*, além do erro (desvio-padrão) de cada um desses métodos. Com as tabelas corrobora-se o resultado sugerido no começo deste parágrafo. Para  $\lambda = 1$  os erros relativos encontrados com os métodos *MC* e *LD* quando comparados com *PMC* são menores que os erros inerentes aos próprios métodos, até  $\phi = 0,05$ . No caso de  $\lambda = 2$  isso acontece, aproximadamente, até  $\phi = 0,03$ . Assim, conclui-se que o Método de Mínima Imagem pode ser utilizado nessas condições, sem prejuízos na acurácia dos cálculos das propriedades médias, com ganho em performance computacional.

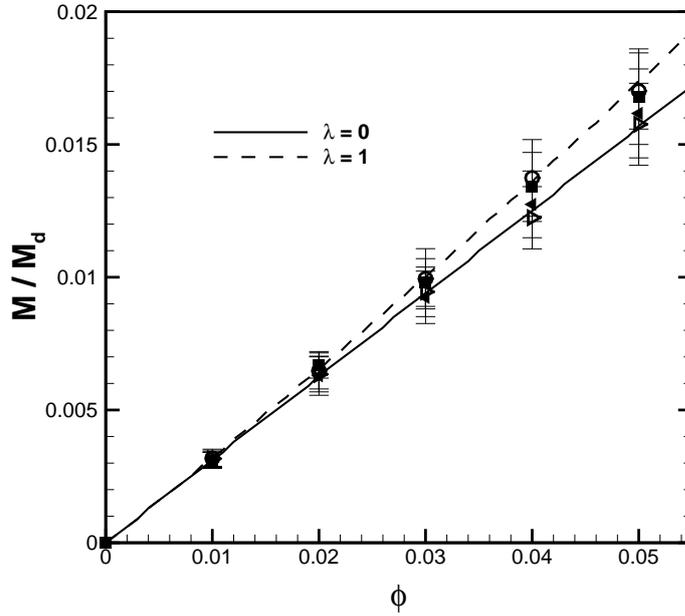


Figura 7.11: Magnetização em função da concentração volumétrica  $\phi$  com  $\alpha = 1$  e  $\lambda = 1$ . As linhas representam o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos numéricos. Na figura: ● PMC, ■ PLD, ► MC e ◄ LD. Detalhe para baixas concentrações.

Tabela 7.1: Magnetização  $M/M_d$  em função da concentração volumétrica  $\phi$  para  $\lambda = 1$ . Dados da figura (7.11).

$\phi$	PMC-LD (%)	Erro LD (%)	PMC-MC (%)	Erro MC (%)	PMC	Erro PMC (%)
0.01	1.79	9.24	0.40	9.11	0.00318	10.78
0.02	2.78	11.37	1.98	10.20	0.00647	10.47
0.03	7.03	9.92	4.94	9.38	0.00994	11.40
0.04	7.24	9.14	10.91	8.53	0.01374	10.50
0.05	4.96	9.84	7.37	9.08	0.01702	8.43

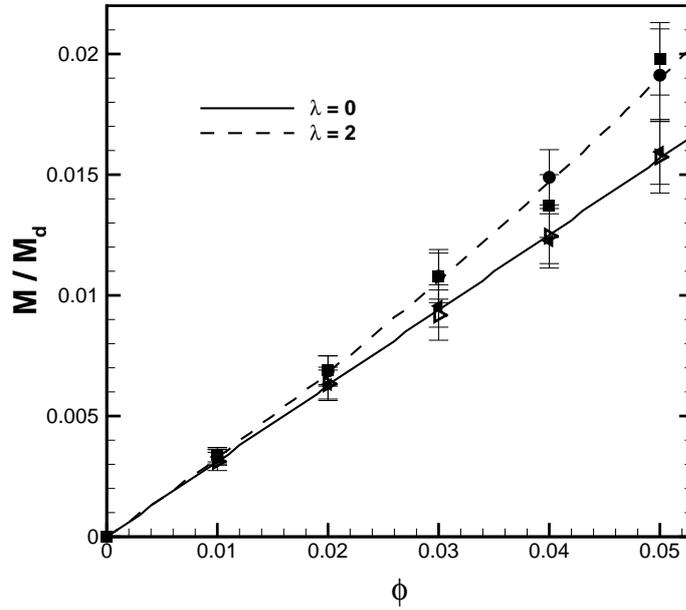


Figura 7.12: Magnetização em função da concentração volumétrica  $\phi$  com  $\alpha = 1$  e  $\lambda = 2$ . As linhas representam o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos numéricos. Na figura: ● PMC, ■ PLD, ► MC e ◄ LD. Detalhe para baixas concentrações.

Tabela 7.2: Magnetização  $M/M_d$  em função da concentração volumétrica  $\phi$  para  $\lambda = 2$ . Dados da figura (7.12).

$\phi$	PMC-LD (%)	Erro LD (%)	PMC-MC (%)	Erro MC (%)	PMC	Erro PMC (%)
0.01	-0.36	9.01	5.40	11.46	0.00330	10.16
0.02	8.13	8.77	7.72	10.08	0.00686	9.12
0.03	11.45	8.14	14.95	9.64	0.01080	8.84
0.04	17.70	7.55	16.36	7.66	0.01489	7.68
0.05	16.61	7.03	17.73	7.79	0.01912	10.04

A magnetização adimensional de equilíbrio em função de  $\lambda$  é mostrada nas figuras (7.13) e (7.14). Em ambos os gráficos  $\alpha = 1$ , mas na figura (7.13)  $\phi = 0,05$  e na figura (7.14)  $\phi = 0,15$ . Mais uma vez nota-se que os métodos MC e LD são válidos apenas para baixos  $\phi$  com  $\lambda \sim 1$ . Para  $\phi = 0,15$  os resultados com esses métodos divergem dos valores preditos por PMC, PLD e Ivanov-Kuznetsova. Nota-se que o modelo de Ivanov-Kuznetsova concorda com os resultados numéricos obtidos com PMC e PLD para  $\lambda \leq 3$  com  $\phi = 0,05$ . No entanto esse modelo prediz a magnetização até  $\lambda = 5$  no caso mais concentrado, em que  $\phi = 0,15$ . Seria razoável supor, porém, que o modelo de Ivanov-Kuznetsova funcionasse melhor para baixas concentrações que o oposto, já que o modelo é uma expansão em  $\phi$ . Essa aparente controvérsia é desfeita quando se analisa a função de distribuição radial da suspensão. A figura (7.15) mostra a função  $g_0$  de uma suspensão na ausência de campo magnético aplicado e diferentes combinações de  $\phi$  e  $\lambda$ , obtida com PMC. Quando  $\lambda = 2$  a função  $g_0$  é muito similar para os casos de  $\phi = 0,05$  e  $\phi = 0,15$ , e possui um valor razoável quando  $r = 1$ , além de ser unitária para  $r \approx 2$ , indicando que não há a formação de cadeias. Nessa situação o modelo de Ivanov-Kuznetsova prevê bem o comportamento da suspensão, já que esse modelo analítico também não considera a formação de cadeias. Quando  $\lambda = 4$  as funções apresentam valores significativamente diferentes. Para  $\phi = 0,15$  a função mostra que há formação de cadeias, assim como para  $\phi = 0,05$ . No entanto esse efeito é muito mais intenso para  $\phi = 0,05$ , justificando assim porque o modelo de Ivanov-Kuznetsova concorda mais quando  $\phi = 0,15$ . Quando  $\phi = 0,05$  há formação de cadeias e essas cadeias estão relativamente distantes umas das outras e de partículas isoladas, o que leva a uma certa estabilidade. Já com uma fração volumétrica  $\phi = 0,15$  as cadeias e as partículas estão mais próximas umas das outras. Essa menor distância faz com que as partículas pertencentes a uma dada cadeia também sejam atraídas por outras cadeias e outras partículas, levando a destruição e construção constante de cadeias, tornando o sistema mais instável e homogêneo em sua estrutura.

Para a condição analisada na figura (7.15), a função  $g_2$  encontrada é nula dentro dos padrões numéricos, ou seja, flutua em torno de 0 com valores insignificantes para todo  $r$ . Isso significa que a suspensão apresenta uma estrutura isotrópica (ver seção 6.5). Mesmo havendo a formação de cadeias devido interações dipolares como mostra a função  $g_0$ , essas cadeias não possuem um alinhamento preferencial nessa situação em que não há campo magnético aplicado. A figura (7.16) mostra as funções  $g_0$  e  $g_2$  para  $\alpha = 1$ ,  $\lambda = 2$  e  $\phi = 0,10$ . Nesta situação há formação de cadeias, como mostra a função  $g_0$ , e essas cadeias possuem tendência de alinhamento com o campo magnético, como mostra a função  $g_2$ . A suspensão é anisotrópica neste caso.

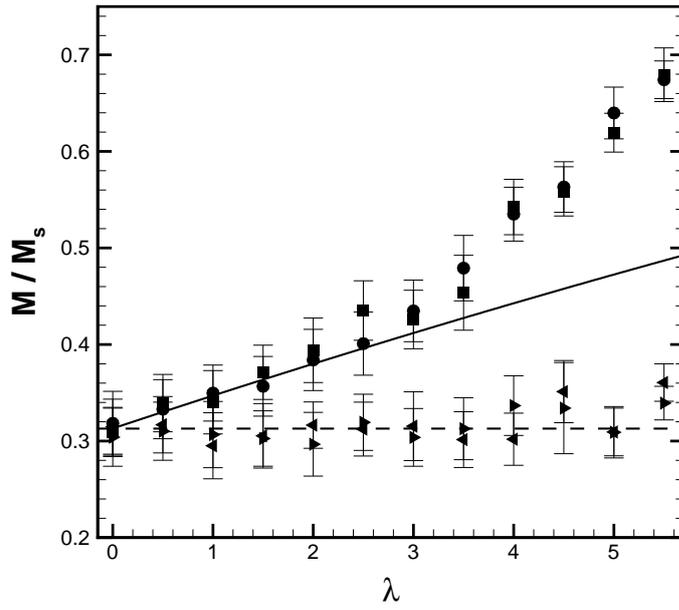


Figura 7.13: Magnetização em função de  $\lambda$  com  $\alpha = 1$  e  $\phi = 0.05$ . A linha tracejada representa a função de Langevin, a cheia o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos. Na figura: ● PMC, ■ PLD, ► MC e ◄ LD.

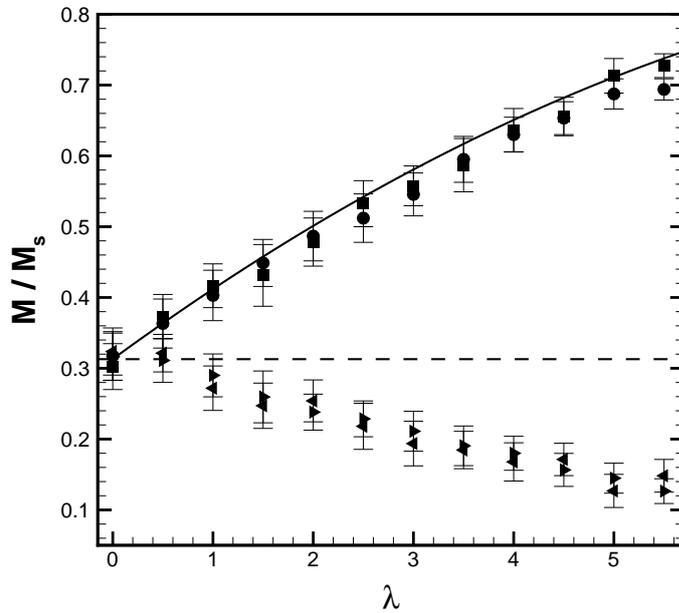


Figura 7.14: Magnetização em função de  $\lambda$  com  $\alpha = 1$  e  $\phi = 0.15$ . A linha tracejada representa a função de Langevin, a cheia o modelo de Ivanov-Kuznetsova e os pontos foram obtidos por diferentes métodos numéricos. Na figura: ● PMC, ■ PLD, ► MC e ◄ LD.

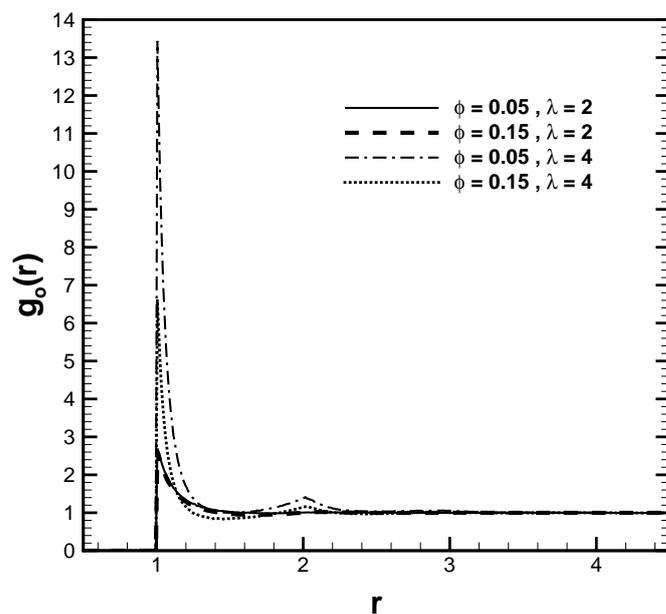


Figura 7.15: Função  $g_o(r)$  usando PMC para  $\alpha = 0$  e diferentes combinações de  $\lambda$  e  $\phi$ .

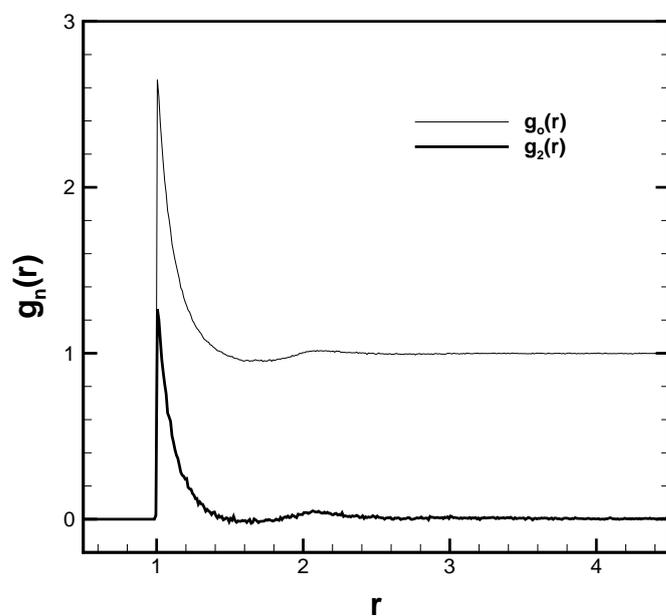


Figura 7.16: Funções  $g_o(r)$  e  $g_2(r)$  usando PMC para  $\alpha = 1, \lambda = 2$  e  $\phi = 0, 10$ .

## 7.3 MAGNETIZAÇÃO EM CISALHAMENTO

Nesta seção é explorado o comportamento da magnetização da suspensão magnética quando há cisalhamento ( $Pe > 0$ ). Para isso é utilizado o método PLD. A figura (7.17) mostra a magnetização adimensional em função de  $\alpha$  para  $Pe = 10$  e  $Pe = 30$ , com fração volumétrica  $\phi = 0,03$ . A linha cheia representa a função de Langevin. Há uma competição entre o torque magnético e o torque provocado pelo cisalhamento, o que diminui o valor da magnetização quando comparada ao valor de equilíbrio. Essa diminuição é mais significativa para maiores taxas de cisalhamento  $Pe$ , como mostra a figura. Nota-se ainda que esse efeito de diminuição da magnetização é maior para  $\lambda = 4$ , situação em que o efeito das interações dipolares entre as partículas está presente. Isso ocorre porque uma partícula que tem seu vetor momento de dipolo girado pelo torque influencia suas vizinhas e altera a orientação dessas também. Esse efeito adjacente não existe quando  $\lambda = 0$ . Para altos valores de campo magnético aplicado a magnetização com  $\lambda = 0$  e  $\lambda = 4$  convergem para o mesmo valor, que é o valor da magnetização de equilíbrio, mostrando que nessa região o comportamento da suspensão é dominado pela interação das partículas com o campo magnético, e as interações partícula-partícula e o cisalhamento não exercem grande influência.

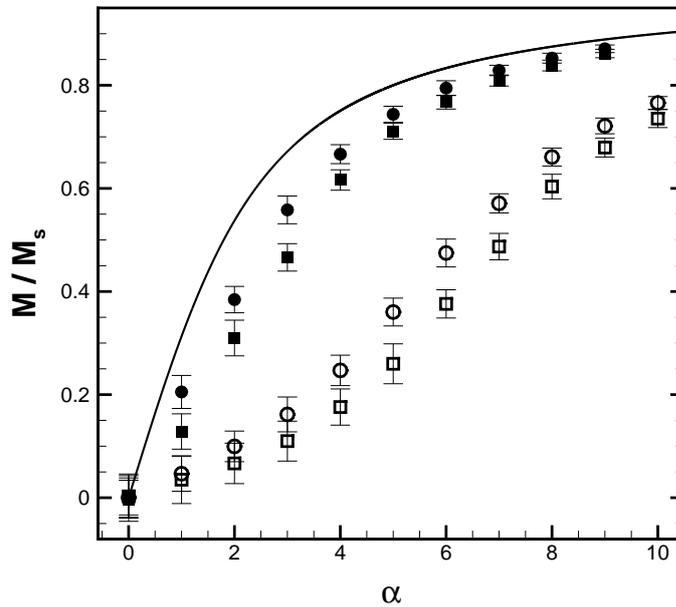


Figura 7.17: Magnetização adimensional em função de  $\alpha$  com  $\phi = 0,03$  e  $Pe = 10$  (símbolos preenchidos) e  $Pe = 30$  (símbolos abertos) usando PLD. A linha cheia representa a função de Langevin. Na figura: ●  $\lambda = 0$  e ■  $\lambda = 4$ .

A figura (7.18) mostra a magnetização adimensional em função de  $Pe$  para  $\alpha = 5$  e

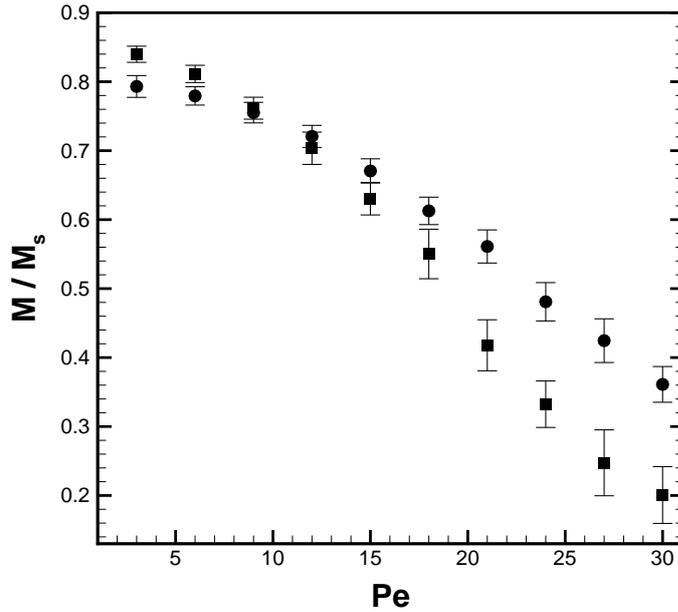


Figura 7.18: Magnetização adimensional em função de  $Pe$  para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0, 15$  e  $\lambda = 0$  ● e  $\lambda = 4$  ■ usando PLD.

$\phi = 0, 15$ . Um aumento de  $Pe$  resulta em uma diminuição da magnetização. Para valores baixos de  $Pe$  nota-se que a magnetização é maior para  $\lambda = 4$ . No entanto com o aumento da taxa de cisalhamento adimensional  $Pe$  a magnetização para a condição em que não são consideradas as interações dipolares ( $\lambda = 0$ ) é significativamente maior. Ou seja, para altos  $Pe$  essas interações dipolares levam a uma diminuição no valor da magnetização da suspensão. A figura (7.19) apresenta os mesmos parâmetros da figura (7.18), mas com fração volumétrica de  $\phi = 0, 05$ . O mesmo comportamento é observado .

As figuras (7.20) e (7.21) apresentam a magnetização adimensional em função do parâmetro  $\lambda$  para  $\alpha = 5$  e  $\phi = 0, 05$ . O resultado da figura (7.20) mostra que há um aumento no valor da magnetização quando a intensidade das interações dipolares é aumentada, quando  $Pe = 3$ . Observa-se ainda uma saturação desse aumento. No entanto, a figura (7.21) mostra uma diminuição no valor da magnetização em função de  $\lambda$  quando  $Pe = 30$ . Em equilíbrio e com a presença de um campo magnético os vetores momento de dipolo das partículas tendem a se alinhar com o campo. O cisalhamento quebra esse alinhamento quando possui intensidade suficiente para girar as partículas. Esse efeito é intensificado quando há interações entre as partículas. Tanto o cisalhamento quanto as flutuações produzidas pelas interações magnéticas dipolares tendem a competir com o alinhamento preferencial dos momentos de dipolos na direção do campo, produzindo uma média volumétrica desses momentos de dipolos orientados na direção do campo ou magnetização menor. Assim, pode-se

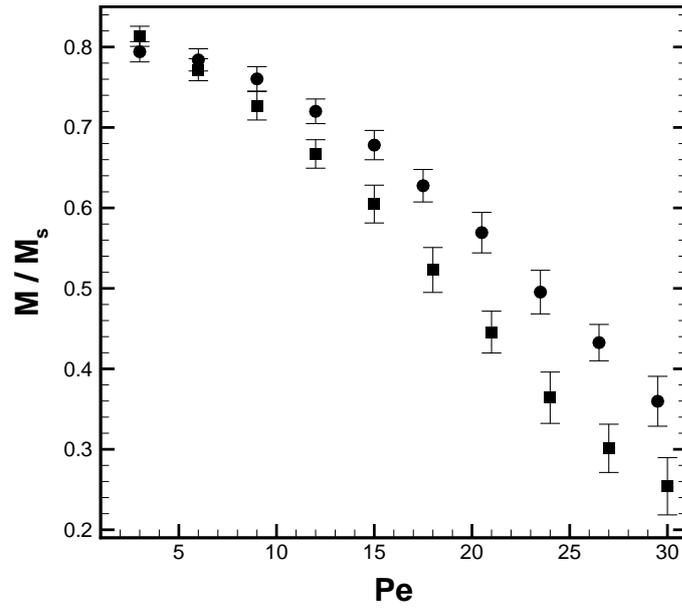


Figura 7.19: Magnetização adimensional em função de  $Pe$  para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,05$  e  $\lambda = 0$  ● e  $\lambda = 4$  ■ usando PLD.

dizer que o cisalhamento externo tende a girar a magnetização do elemento fluido na direção de sua vorticidade, produzindo uma diminuição da magnetização. No caso das interações dipolares, as mesmas produzem flutuações nas orientações dos dipolos que podem ser entendidas como uma espécie de randomização produzida por todos os dipolos vizinhos sobre um dipolo de referência. Esse efeito também compete com a orientação dos dipolos na direção preferencial imposta pelo campo externo aplicado.

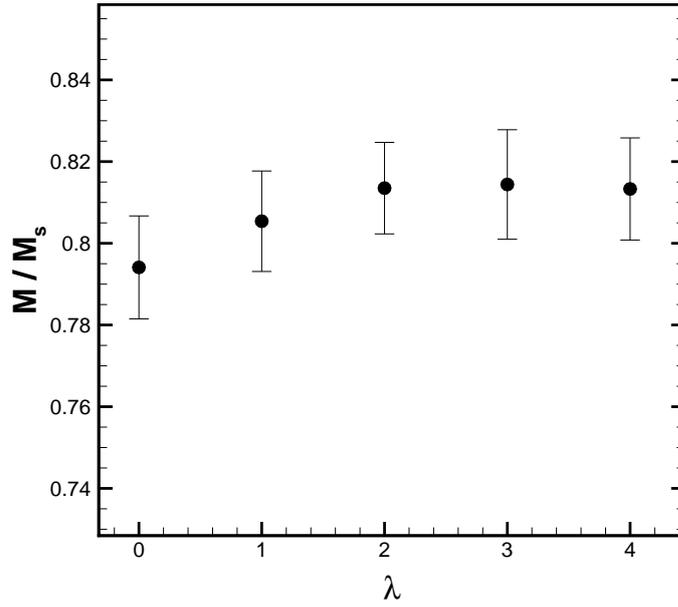


Figura 7.20: Magnetização adimensional em função de  $\lambda$  para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,05$  e  $Pe = 3$  usando PLD.

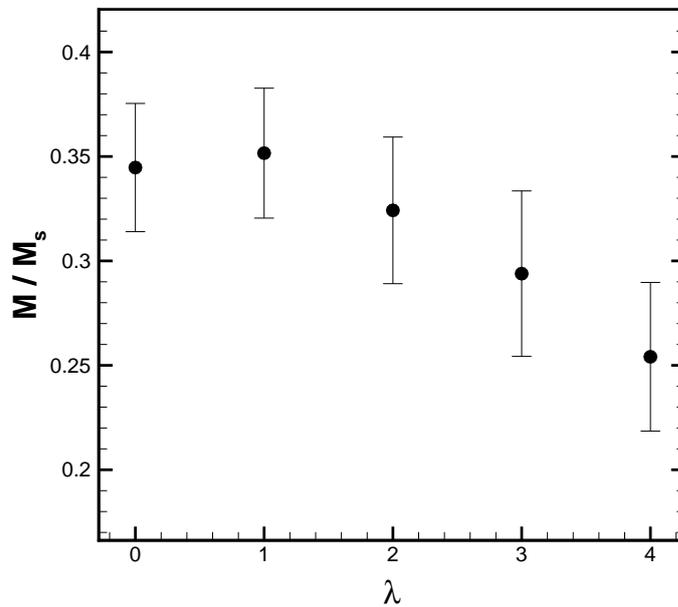


Figura 7.21: Magnetização adimensional em função de  $\lambda$  para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,05$  e  $Pe = 30$  usando PLD.

## 7.4 VISCOSIDADE ROTACIONAL

Nesta seção são apresentados resultados da viscosidade rotacional, usando PLD. A viscosidade rotacional é dada pela equação (2.133). Na simulação, seu valor é calculado a partir da equação adimensional:

$$\frac{\eta_r}{\eta} = 9 \phi d_1 \frac{\alpha}{Pe} . \quad (7.4)$$

Na equação (7.4),  $d_1$  é a média da orientação dos vetores momento de dipolo das partículas na direção do escoamento, ou direção  $\mathbf{e}_1$ . Essa propriedade mede o aumento da viscosidade do fluido causado por torques internos, ou seja, pela resistência adicional ao escoamento devido ao desalinhamento entre o momento de dipolo da partícula e o campo magnético, que nesse caso é aplicado na direção do gradiente da velocidade. Foi usado PLD e não o LD pois a viscosidade é calculada também para fluidos mais concentrados onde não é válida a utilização do método da Mínima Imagem. A figura (7.22) mostra como a viscosidade rotacional varia em função da fração volumétrica para  $\alpha = 1$ ,  $Pe = 5$  e  $\lambda = 0, 1$  e  $2$ . Nota-se um comportamento linear para  $\lambda = 0$  em todo o intervalo de frações volumétricas considerado, concordando bem com o modelo de Martsenyuk [5]. Para  $\lambda = 1$  e para  $\lambda = 2$  observa-se um regime linear apenas para frações volumétricas pequenas. Depois essa linearidade é quebrada. Isso acontece porque há a formação de cadeias, que não são previstas pelo modelo analítico. Para valores pequenos de  $\phi$  essas cadeias ainda não existem ou são poucas, portanto não chegam a influenciar o comportamento macroscópico do fluido. Foi escolhido  $Pe = 5$  pois com valores menores o movimento browniano domina o comportamento do fluido levando a grandes barras de erro nos resultados. Um  $Pe$  maior leva a uma convergência dos valores da viscosidade para diferentes  $\lambda$ , como será mostrado a seguir.

A figura (7.23) mostra a viscosidade rotacional em função da fração volumétrica com  $\alpha = 2$ ,  $Pe = 5$  e  $\lambda = 0, 1$  e  $2$ . As mesmas conclusões desenvolvidas para a figura (7.22) podem ser aplicadas também à figura (7.23). Nota-se um comportamento linear para pequenos  $\phi$  mesmo quando  $\lambda > 0$ . No entanto esse regime linear é quebrado devido a formação de pequenas estruturas na suspensão induzidas por efeitos magnéticos. Com  $\alpha = 2$  a viscosidade rotacional é maior que a correspondente a  $\alpha = 1$ , chegando a quase 10% do valor da viscosidade do fluido base.

A viscosidade rotacional adimensional em função de  $\alpha$  é apresentada na figura (7.24). A fração volumétrica é de 3% e  $Pe = 10$ . Para  $\lambda = 0$  o modelo analítico de Martsenyuk e os resultados numéricos concordam muito bem em todo o intervalo de  $\alpha$ . Para  $\lambda = 2$  há pouca diferença em relação a  $\lambda = 0$ . Isso pode ser explicado pelo fato de ainda não

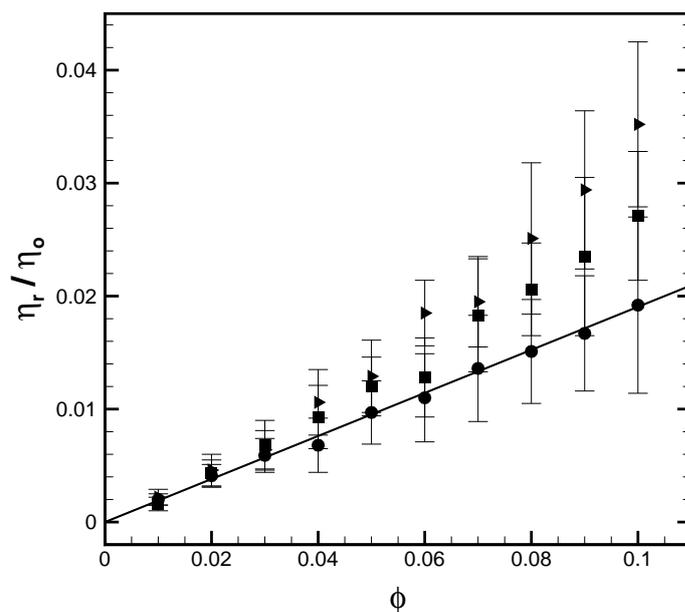


Figura 7.22: Viscosidade rotacional adimensional em função da fração volumétrica  $\phi$  com  $Pe = 5$  e  $\alpha = 1$  para diferentes  $\lambda$ , com 256 partículas, usando Dinâmica de Langevin com Somas de Ewald. Na figura:  $\bullet$   $\lambda = 0$ ,  $\blacksquare$   $\lambda = 1$  e  $\blacktriangleright$   $\lambda = 2$ . A linha cheia representa a equação de Martsenyuk [5].

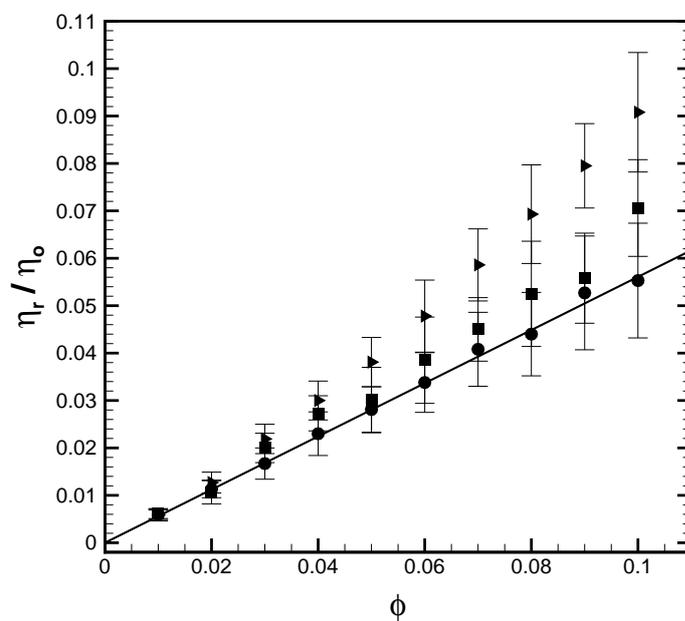


Figura 7.23: Viscosidade rotacional adimensional em função da fração volumétrica  $\phi$  com  $Pe = 5$  e  $\alpha = 2$  para diferentes  $\lambda$  usando PLD. Na figura:  $\bullet$   $\lambda = 0$ ,  $\blacksquare$   $\lambda = 1$  e  $\blacktriangleright$   $\lambda = 2$ . A linha cheia representa a equação de Martsenyuk.

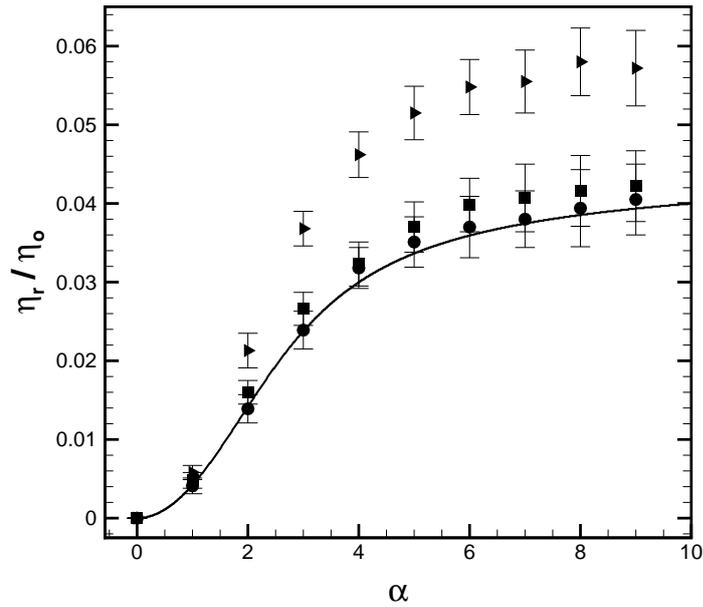


Figura 7.24: Viscosidade rotacional adimensional em função de  $\alpha$  para  $\phi = 0,03$  e  $Pe = 10$  usando PLD. A linha cheia representa a viscosidade rotacional dada pelo modelo de Martsenyuk. Na figura:  $\bullet$   $\lambda = 0$ ,  $\blacksquare$   $\lambda = 2$  e  $\blacktriangleright$   $\lambda = 4$ .

haver um número significativo de cadeias ou agregados de partículas. Já com  $\lambda = 4$  nota-se uma diferença significativa no valor da viscosidade, mostrando que a formação de cadeias dificulta o cisalhamento, aumentando essa resistência interna, o que é traduzido em um aumento da viscosidade.

As figuras (7.25) e (7.26) mostram a viscosidade rotacional adimensional em função de  $Pe$ . Quando não há interações magnéticas entre as partículas há uma região em baixos  $Pe$  em que a viscosidade é constante, ou seja, é recuperado nessa região um comportamento puramente newtoniano de viscosidade. Como as partículas não interagem entre si, o que ocorre é que o escoamento ainda não é forte o suficiente para fazer com que as partículas girem, já que o campo magnético a mantém alinhada na sua direção. Para  $Pe$  mais altos o escoamento passa a ser mais significativo e faz com que as partículas girem com a vorticidade do cisalhamento, diminuindo assim o efeito de atrito que é resultante do movimento quando o fluido contorna a partícula. Para  $\lambda > 0$  outro comportamento é notado. Não é observada nesses casos uma região newtoniana, ou com viscosidade constante, em baixo  $Pe$ . Isso acontece porque agora há a formação de cadeias na direção do campo magnético. Essas cadeias são quebradas, ou passam a ser orientadas na direção do escoamento, com o aumento do efeito da força de cisalhamento sobre a estrutura. Para  $Pe \approx 30$ , tanto para  $\phi = 0,05$  quanto para  $\phi = 0,15$ , não existem mais cadeias na direção do escoamento, o que leva a

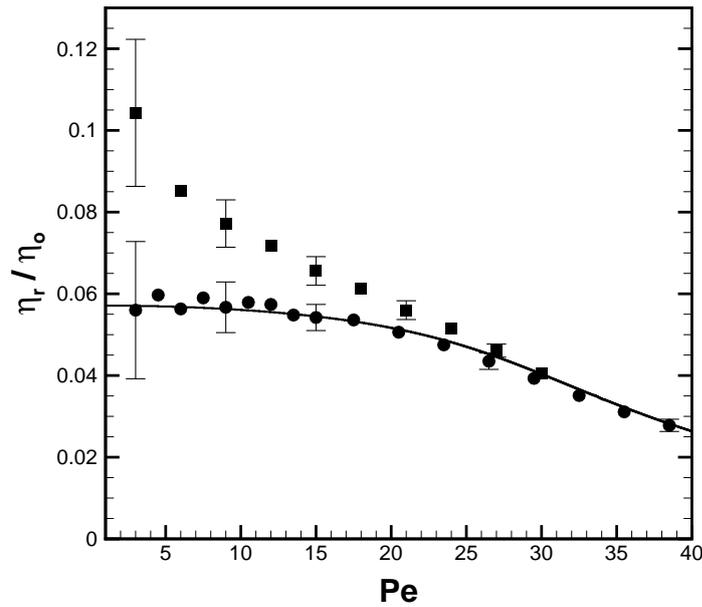


Figura 7.25: Viscosidade rotacional adimensional em função de  $Pe$  com  $\alpha = 5$  e  $\phi = 0,05$  para diferentes  $\lambda$  usando PLD. A linha cheia representa o valor predito pela lei de Martsenyuk. Os desvios padrão não foram colocados em todos os pontos para facilitar a visualização. Na figura: ●  $\lambda = 0$  e ■  $\lambda = 3$

uma convergência na viscosidade rotacional mesmo para diferentes  $\lambda$ . A figura (??) mostra a viscosidade rotacional adimensional em função de  $\lambda$  com  $\alpha = 5$  e  $\phi = 0,05$  para  $Pe = 3$  e  $Pe = 30$ . Como já discutido para  $Pe = 30$  as interações dipolares não possuem mais influência na viscosidade. Já para  $Pe = 3$  as interações magnéticas dipolares entre as partículas influenciam significativamente a reologia da suspensão.

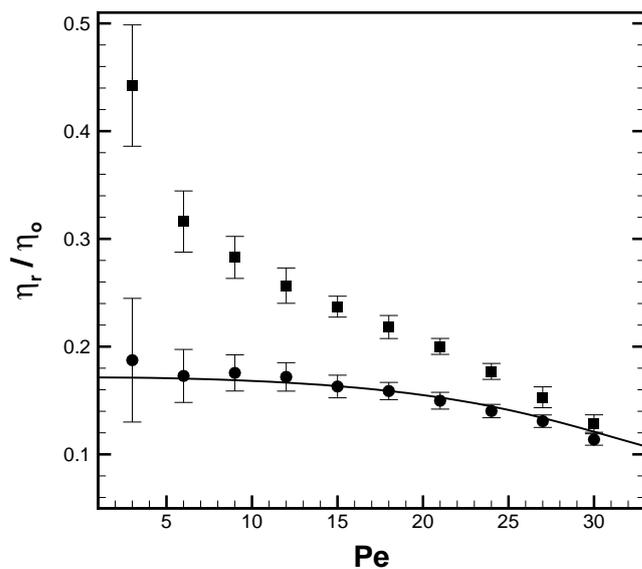


Figura 7.26: Viscosidade rotacional adimensional em função de  $Pe$  com  $\alpha = 5$  e  $\phi = 0,15$  para diferentes  $\lambda$ , com 256 partículas, usando Dinâmica de Langevin com Somas de Ewald. A linha cheia representa o valor predito pela lei de Martsenyuk. Na figura: ●  $\lambda = 0$  e ■  $\lambda = 4$ .

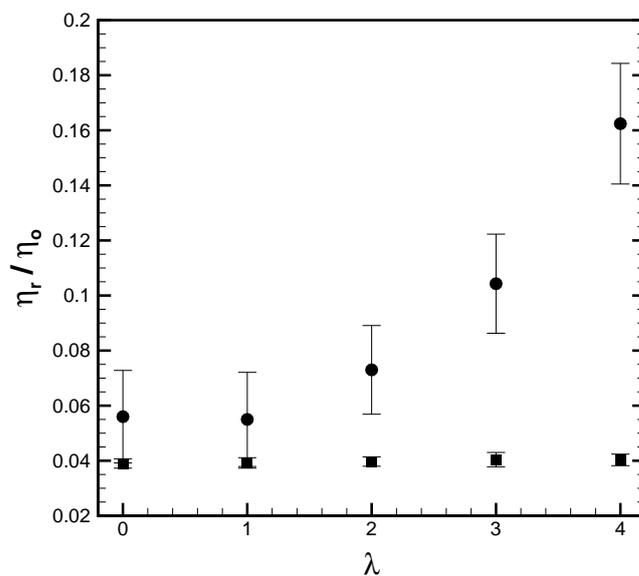


Figura 7.27: Viscosidade rotacional adimensional em função de  $\lambda$  com  $\alpha = 5$  e  $\phi = 0,05$  para diferentes  $Pe$  usando PLD. Na figura: ●  $Pe = 3$  e ■  $Pe = 30$

Assim como nos resultados experimentais da reologia da suspensão magnética de magnetita em óleo mineral (seção 5.1), nota-se nos resultados das figuras (7.25) e (7.26) a existência de um tempo de relaxação característico de estrutura de partículas. No caso em que  $\lambda = 0$ , nota-se que somente quando  $Pe > 10$  o cisalhamento interfere na viscosidade rotacional da suspensão. Ou seja é necessário que o escoamento seja forte o suficiente para girar as partículas isoladas, eliminando a tendência de orientação com o campo magnético aplicado. No entanto, quando  $\lambda > 0$  nota-se que mesmo para baixos  $Pe$  o escoamento já altera significativamente a viscosidade da suspensão, devido ruptura de estruturas. Ou seja, existe um tempo puramente magnético relacionado à rotação da partícula isolada, e um tempo estrutural, relacionado à modificação das estruturas de partículas, além do tempo de cisalhamento. O tempo de estrutura é proporcional a uma tensão mínima de escoamento  $\Sigma_e = \text{Sigma}_e(H)$ , equação (5.9). Da razão entre o tempo estrutural e o tempo do escoamento resulta o parâmetro  $Ca_m$ . Portanto, devem ser analisados os parâmetros  $Pe$  e  $Ca_m$  quando se deseja estudar a influência do escoamento na reologia da suspensão.

As figuras (7.28), (7.29), (7.30) e (7.31) mostram as estruturas finais da simulação para pontos da figura (7.25). Para melhor visualização foi escolhida uma seção com largura igual ao diâmetro da partícula e perpendicular à direção  $z$ , facilitando a identificação de cadeias e pequenas estrutura. Nas figuras o escoamento se dá na direção  $x$  e o campo magnético é aplicado na direção  $y$ . Nas figuras (7.28) e (7.29) a intensidade do campo magnético ( $\alpha = 1$ ), a taxa de cisalhamento ( $Pe = 3$ ) e a concentração volumétrica de partículas ( $\phi = 0,05$ ) são as mesmas, o que muda é a intensidade de interação dipolar entre as partículas. Com  $\lambda = 4$  nota-se a presença de cadeias com até 7 partículas alinhadas na direção do campo magnético, o que não é observado com  $\lambda = 0$ . Essa análise da microestrutura justifica a diferença de viscosidade observada nestes dois casos: para  $\lambda = 0$  a viscosidade rotacional é de cerca de 5% da viscosidade do fluido base, enquanto para  $\lambda = 4$  esse valor aumenta para mais de 15%, mostrando que a tensão extra associada com a estrutura de cadeias é responsável por um aumento na resistência das partículas à ação do cisalhamento. As figuras (7.30) e (7.31) mostram uma seção da estrutura com  $\lambda = 0$  e  $\lambda = 4$ , respectivamente, e  $Pe = 30$ . Neste caso, nota-se que há uma diminuição no número de cadeias e que em nenhum caso a cadeia é orientada na direção do campo magnético. A semelhança entre as figuras é justificada porque, com esse valor de  $Pe$ , e para valores maiores deste parâmetro, a viscosidade independe do valor de  $\lambda$ .

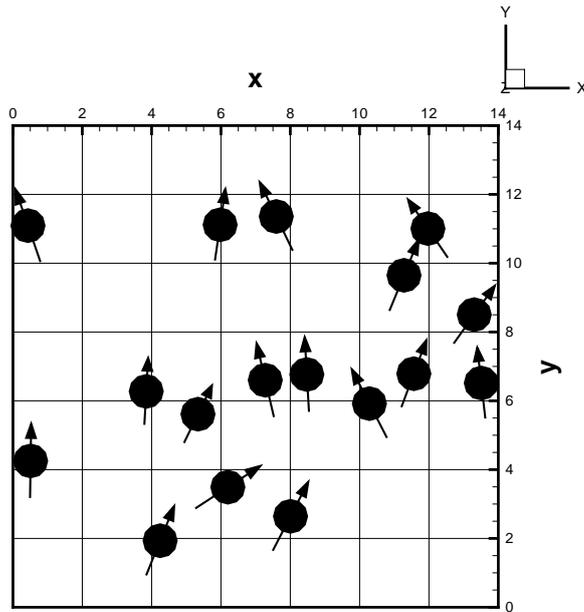


Figura 7.28: Seção transversal da estrutura final da simulação para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,05$ ,  $\lambda = 0$  e  $Pe = 3$ , referente ao gráfico da figura (7.25). O escoamento é na direção  $x$  e o campo magnético está orientado na direção  $y$ .

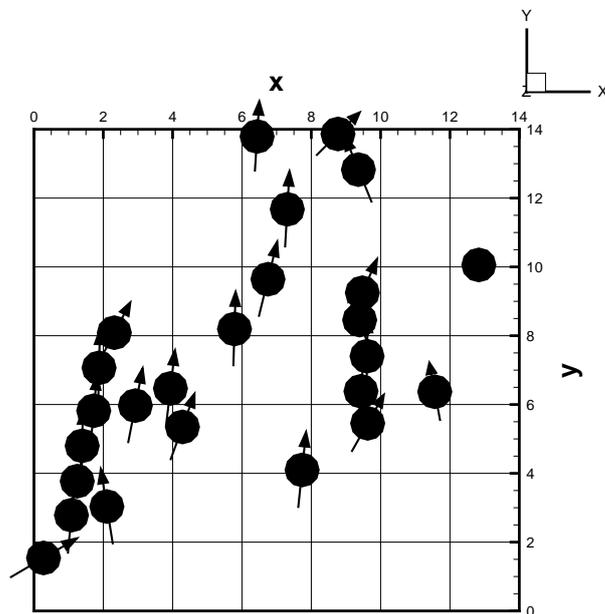


Figura 7.29: Seção transversal da estrutura final da simulação para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,05$ ,  $\lambda = 4$  e  $Pe = 3$ , referente ao gráfico da figura (7.25). O escoamento é na direção  $x$  e o campo magnético está orientado na direção  $y$ .

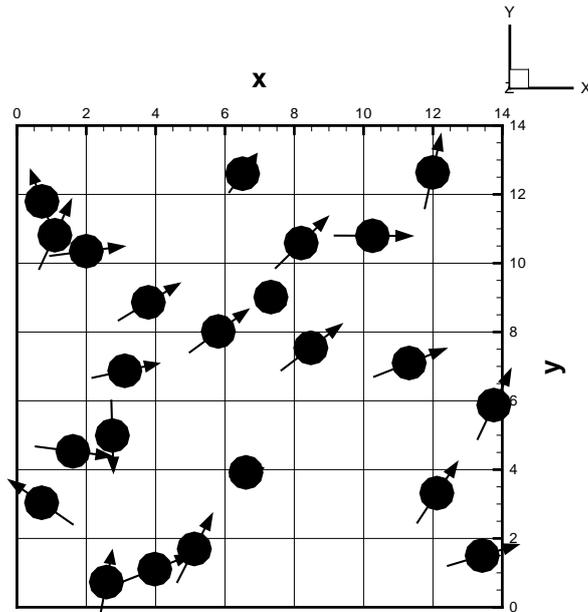


Figura 7.30: Seção transversal da estrutura final da simulação para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,05$ ,  $\lambda = 0$  e  $Pe = 30$ , referente ao gráfico da figura (7.25). O escoamento é na direção  $x$  e o campo magnético está orientado na direção  $y$ .

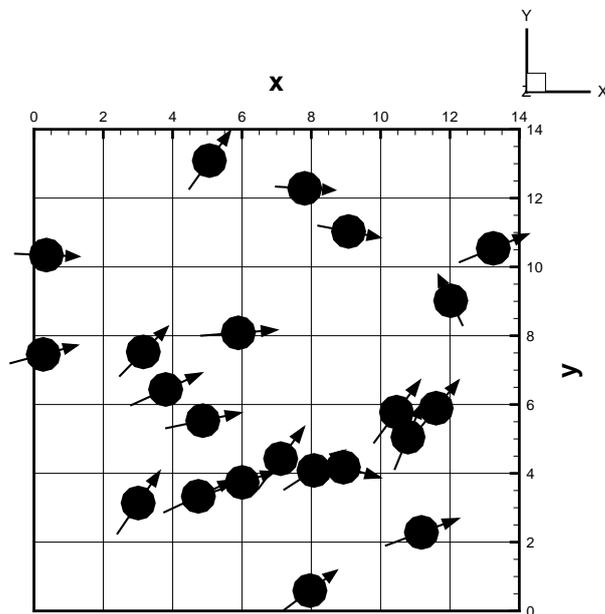


Figura 7.31: Seção transversal da estrutura final da simulação para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,05$ ,  $\lambda = 4$  e  $Pe = 30$ , referente ao gráfico da figura (7.25). O escoamento é na direção  $x$  e o campo magnético está orientado na direção  $y$ .

As figuras (7.32), (7.33), (7.34) e (7.35) mostram as estruturas referentes aos pontos do gráfico da figura (7.26). As mesmas conclusões desenvolvidas no parágrafo anterior são válidas neste caso, agora com  $\phi = 0,15$ . Nota-se que as viscosidades rotacionais para  $\lambda = 0$  e  $\lambda = 4$  são praticamente iguais quando  $Pe = 30$ , condição muito diferente de quando  $Pe = 3$ , em que a viscosidade rotacional para  $\lambda = 0$  é menos que a metade da viscosidade para  $\lambda = 4$ .

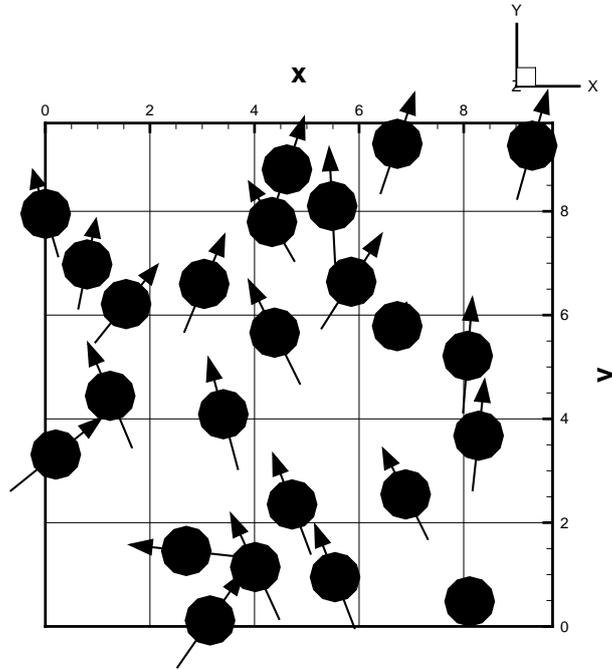


Figura 7.32: Seção transversal da estrutura final da simulação para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,15$ ,  $\lambda = 0$  e  $Pe = 3$ , referente ao gráfico da figura (7.26). O escoamento é na direção  $x$  e o campo magnético está orientado na direção  $y$ .

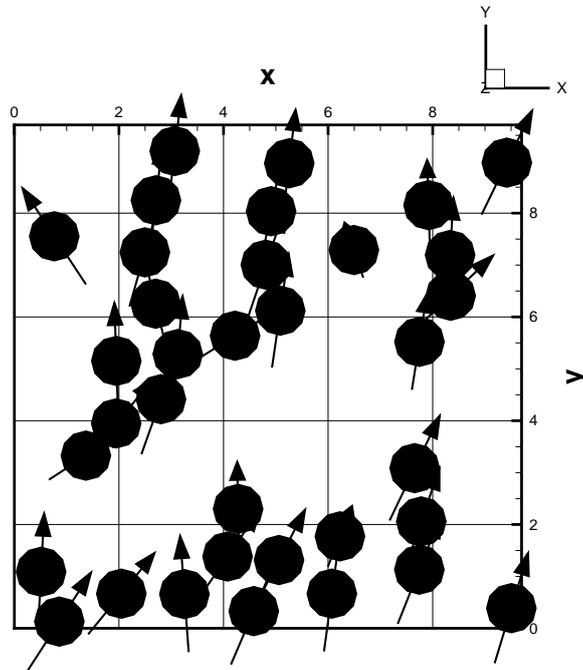


Figura 7.33: Seção transversal da estrutura final da simulação para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,15$ ,  $\lambda = 4$  e  $Pe = 3$ , referente ao gráfico da figura (7.26). O escoamento é na direção  $x$  e o campo magnético está orientado na direção  $y$ .

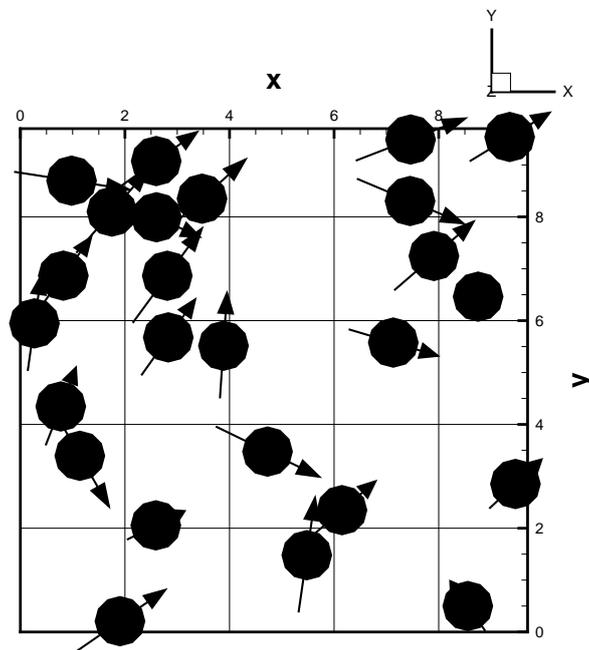


Figura 7.34: Seção transversal da estrutura final da simulação para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,15$ ,  $\lambda = 0$  e  $Pe = 30$ , referente ao gráfico da figura (7.26). O escoamento é na direção  $x$  e o campo magnético está orientado na direção  $y$ .

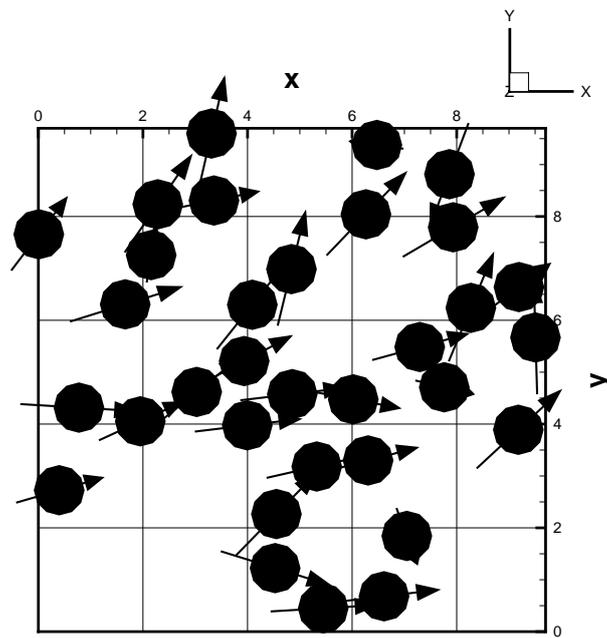


Figura 7.35: Seção transversal da estrutura final da simulação para  $\alpha = 5$ ,  $\phi = 0,15$ ,  $\lambda = 4$  e  $Pe = 30$ , referente ao gráfico da figura (7.26). O escoamento é na direção  $x$  e o campo magnético está orientado na direção  $y$ .

# Capítulo 8

## Considerações Finais

### 8.1 CONCLUSÕES

Neste trabalho investigou-se experimental e teoricamente o comportamento reológico e microestrutural de suspensões de partículas magnéticas sujeitas a um campo magnético externo aplicado e sob cisalhamento.

Na parte experimental foram estudados dois fluidos magnéticos diluídos: uma suspensão de partículas de magnetita em óleo mineral e uma suspensão (FCNS5AO) de maghemita em óleo mineral naftênico. As viscosidades desses fluidos foram medidas utilizando-se um reômetro de placas paralelas com um dispositivo magneto-reológico capaz de gerar um campo magnético perpendicular ao vetor vorticidade do escoamento.

A suspensão de magnetita apresentou comportamento linear da viscosidade em função da fração volumétrica até a fração máxima estudada, de 0,01, na ausência de campo magnético. Com a presença de campo esse comportamento linear é verificado apenas até frações volumétricas de aproximadamente 0,004. Essa não-linearidade é causada pela forte anisotropia presente na suspensão devido o alinhamento das cadeias de partículas na direção do campo magnético, como mostram as análises da microestrutura realizadas com um microscópio ótico. Para o caso sem campo aplicado, as análises com o microscópio mostram a presença de estruturas de partículas, mas com distribuição mais isotrópica. Foi proposta uma função exponencial com dois parâmetros para ajustar os resultados. Da viscosidade total observada, foram separadas as contribuições lineares devido a presença das partículas e devido o torque magnético provocado nas partículas pelo campo da contribuição não-linear causada pela formação de cadeias na direção do campo. Verificou-se que essa contribuição não-linear aumenta com o aumento da fração volumétrica e com o aumento do campo magnético aplicado. Notou-se ainda que uma maior taxa de cisalhamento resulta

em uma viscosidade menor da suspensão, já que o escoamento tende a quebrar as cadeias formadas.

Os resultados da viscosidade em função da taxa de cisalhamento para a suspensão de magnetita em óleo mineral mostram um comportamento newtoniano quando não há campo. Na presença de campo é observado um comportamento do tipo pseudo-plástico. Para altas taxas de cisalhamento nota-se que as viscosidades sem e com campo magnético aplicado tendem ao mesmo valor. Isso significa que para esses casos o cisalhamento domina completamente o comportamento da suspensão e o campo magnético já não exerce nenhuma influência no comportamento reológico do fluido. Em outras palavras pode-se dizer que para altas taxas de cisalhamento o tempo característico do escoamento é muito menor que um tempo característico estrutural ou magnético tal que a hidrodinâmica domina efeitos de forças magnéticas. As estruturas são completamente rompidas e atingem uma saturação em que a viscosidade rotacional da suspensão, que depende de efeitos puramente magnéticos, passa a ser invariante. Os gráficos da viscosidade em função do campo magnético aplicado mostram o aumento da viscosidade e uma saturação para o caso com fração volumétrica de 0,001. A comparação com resultados analíticos mostram que a teoria subestima consideravelmente os resultados experimentais obtidos. Isso ocorre devido a formação de grandes agregados na suspensão, efeito não previsto na análise teórica.

A viscosidade do FCNS5AO, com fração volumétrica de 0,007, foi analisada em função da taxa de cisalhamento e do campo magnético aplicado. O mesmo comportamento observado para a suspensão de magnetita também é observado para o FCNS5AO. No entanto, neste caso, o modelo analítico proposto por Shliomis [80] se aproximou mais do resultado experimental obtido. Essa maior aproximação se deve ao fato de as cadeias formadas no FCNS5AO serem menores que as cadeias formadas na suspensão de magnetita, já que as partículas do FCNS5AO são recobertas com ácido oléico e sofreram tratamentos químicos para evitar a formação de grandes aglomerados.

Na parte numérica foram simuladas partículas magnéticas suspensas em um fluido base newtoniano. As partículas são esféricas, com diâmetro homogêneo e possuem interação de curto alcance de esferas rígidas. As simulações foram feitas com dois métodos: o método de Monte Carlo e o método de Dinâmica de Langevin.

Primeiramente foi analisado o efeito das condições de contorno da célula de simulação sobre a magnetização de equilíbrio. Com os métodos de Monte Carlo e Dinâmica de Langevin foram feitas simulações com condições de contorno não-periódicas, com o método da Mínima Imagem, e com condições de contorno periódicas, com as somas de Ewald. Essa análise foi feita devido o decaimento lento da força e do torque de interação entre as partículas. Com os resultados foi possível definir até que condições o método da Mínima Imagem, que

possui um custo computacional muito menor que as somas de Ewald, pode ser utilizado com margem de erro aceitável. Os resultados obtidos com Dinâmica de Langevin e Monte Carlo apresentaram grande concordância. A magnetização de equilíbrio usando somas de Ewald foi comparada com o modelo analítico de Ivanov-Kuznetsova [3]. Para fração volumétrica de 0,15, os resultados analíticos concordaram bem com os resultados numéricos mesmo para altos valores de interação partícula-partícula. Já para uma fração volumétrica de 0,05 esses resultados não apresentaram boa concordância. Esse fato é explicado pela análise da função de distribuição radial da suspensão, que mostra que a formação de agregados é muito mais intensa no caso de fração volumétrica de 0,05. Ainda em equilíbrio, a função de distribuição radial também é usada para mostrar a anisotropia existente na suspensão quando há campo magnético aplicado, devido à formação de cadeias que se alinham na direção do campo magnético.

Em seguida, a magnetização é estudada com o método de Dinâmica de Langevin e somas de Ewald na presença de cisalhamento simples. O cisalhamento tende a quebrar o alinhamento das partículas com o campo magnético. Esse efeito é notado por uma significativa diminuição da magnetização. Observou-se, ainda, uma região de baixo cisalhamento em que a magnetização é maior quando são consideradas interações magnéticas entre as partículas. Para altas taxas de cisalhamento a magnetização é maior quando não são consideradas interações dipolares entre as partículas. Esse resultado pode ser explicado considerando que uma partícula desalinhada pelo cisalhamento tende a girar outra ainda alinhada quando há interação dipolar. Então uma partícula teste tende a girar devido o cisalhamento e interações com outras partículas. Na ausência de interação a partícula gira apenas por influência do cisalhamento.

Por fim, são apresentados os resultados da viscosidade rotacional da suspensão. Em função da fração volumétrica, a viscosidade apresenta comportamento linear na ausência de interações dipolares entre as partículas. Quando há interação, esse comportamento se torna não-linear, mostrando que as interações entre as partículas tendem a aumentar a viscosidade rotacional da suspensão. O mesmo comportamento é observado quando a viscosidade rotacional é analisada em função do campo aplicado. Já em função da taxa de cisalhamento, a viscosidade rotacional apresenta um comportamento newtoniano para baixas taxas, quando não são consideradas interações entre as partículas. As interações dipolares fazem com que a suspensão apresente um comportamento do tipo *shear-thinning*. A análise da microestrutura mostra como o cisalhamento gira as partículas e como a formação de cadeias na direção do campo explica a resposta reológica macroscópica do fluido.

Os resultados experimentais mostram um aumento muito maior da viscosidade na presença de campo quando comparados com os resultados obtidos teoricamente por simu-

lações dinâmicas de partículas magnéticas. No modelo da simulação as partículas possuem diâmetro homogêneo e interações repulsivas de curto alcance impedem a agregação de partículas. Além disso o número de partículas simuladas (256), limitado pelos custos computacionais, também contribui para a divergência dos resultados. A análise da microestrutura da magnetita mostra que há a formação de estruturas mesmo na ausência de campo. Quando um campo magnético é aplicado são formadas grandes estruturas com milhares de partículas. O FCNS5AO, apesar de ter as partículas revestidas com ácido oléico, também apresenta formação de grandes agregados, que resulta em uma viscosidade maior que a prevista pela teoria. Para comparações quantitativas dos resultados numéricos aqui obtidos seriam, portanto, necessários estudos com um fluido magnético que se aproximasse mais do modelo proposto, principalmente no que se refere à formação de agregados. Outra hipótese seria modelar um sistema correspondente ao observado experimentalmente, com a formação de grandes agregados.

Apesar das divergências das comparações quantitativas dos resultados experimentais e numéricos, uma comparação qualitativa pode ser feita. A figura (5.1) mostra a viscosidade obtida experimentalmente e a figura (7.22) mostra a viscosidade obtida numericamente em função da fração volumétrica. Nota-se em ambos os casos uma região linear para baixas frações volumétricas, sendo observada uma região não-linear para altas frações volumétricas. No entanto, no experimento a fração volumétrica varia entre 0,001 e 0,01, enquanto na simulação numérica essa variação é entre 0,01 e 0,10. Assim, a formação de grandes agregados leva a maiores esforços do cisalhamento para quebrá-los, efeito traduzido em aumento da viscosidade do fluido. A análise de microestrutura da suspensão de magnetita da figura (5.22) mostra uma condição de cadeias alinhadas com o campo magnético aplicado. Essa tendência de alinhamento resultando em uma estrutura anisotrópica também é observada na figura (7.33), resultado de simulação numérica.

As figuras (5.13) e (7.26) mostram a viscosidade em função da taxa de cisalhamento obtidas por experimento e por simulação numérica, respectivamente. Para o caso experimental, figura (5.13), o número de Péclet máximo é de 0,69. Seria esperado então que o cisalhamento não alterasse significativamente o comportamento do fluido para baixas taxas, já que o tempo de relaxação browniano é muito menor que o tempo característico do escoamento. No entanto observa-se que há um pronunciado *shear-thinning* nessas condições. Foi proposto no trabalho que existe um terceiro tempo característico envolvido, que seria um tempo relacionado à estrutura de cadeias formadas. Esse efeito pode ser explicado observando o resultado numérico da figura (7.26). Quando não existem interações dipolares entre as partículas (sem estruturas), o cisalhamento não influencia na viscosidade da suspensão em baixos números de Péclet. Ou seja, a viscosidade só vai se alterar quando o cisalhamento for forte o bastante para girar a partícula e desalinhar seu vetor momento de

dipolo da direção do campo. Por outro lado, quando há interações entre as partículas com a formação de cadeias, o cisalhamento altera a viscosidade do fluido mesmo para baixas taxas de cisalhamento. Assim existe um tempo característico relacionado às estruturas formadas. A razão entre esse tempo e o tempo do escoamento pode ser interpretada como um número de capilaridade magnética.

## 8.2 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

Na parte experimental, algumas sugestões para dar continuidade a este trabalho incluem:

- Determinar a viscosidade com a presença de campo magnético de suspensões mais concentradas;
- Estudar o comportamento da viscosidade de um fluido magnético com campo aplicado em função da temperatura;
- Analisar o comportamento viscoelástico de suspensões magnéticas com escoamentos *step-strain* e oscilatórios;
- Determinar módulos elásticos e viscosos em regimes linear e não-linear de deformação, assim como a função relaxação de tensões e tensão aplicada ou de escoamento;
- Caracterizar o comportamento de um fluido magnético em escoamento quadrático em tubo capilar na presença de campo magnético variável paralelo e perpendicular à direção do escoamento.

Com relação à parte de simulação numérica, são sugestões para trabalhos futuros:

- Analisar fatores de estrutura dinâmico da suspensão magnética para diferentes números de onda  $k$ ;
- Determinar o tensor  $\langle u'u' \rangle$  produzido por flutuações magnéticas dipolares. Calcular correlações de flutuação e um coeficiente de difusão anisotrópico não Browniano associado com essas flutuações de velocidade das partículas induzidas por interações magnéticas em diferentes números de  $Pe$  e frações volumétricas de partículas  $\phi$ . Determinar uma viscosidade efetiva através dessas flutuações e possivelmente uma pressão de partícula ou pressão magnética;
- Estudar regimes de flutuações com base num referencial que se desloca com a velocidade média das partículas;

- Considerar partículas com diâmetros heterogêneos, com uma distribuição gaussiana, por exemplo, e analisar a influência dessa heterogeneidade na resposta microestrutural e reológica do fluido;
- Incluir o efeito do surfactante na partícula, considerando um diâmetro magnético efetivo;
- Analisar a influência da inércia da partícula, simulando casos em que o tempo de relaxação inercial da partícula é da mesma ordem que o tempo de relaxação browniano;
- Simular interações hidrodinâmicas das partículas;
- Simular escoamentos cisalhantes oscilatórios para determinar o comportamento viscoelástico linear e não-linear na presença de campo magnético e de interações dipolares entre as partículas.

Vale ressaltar que experimentos de propriedades viscoelásticas lineares e não-lineares com fluidos magnéticos já estão sendo realizados no laboratório de Microhidrodinâmica e Reologia do VORTEX. O autor da presente dissertação desenvolverá um doutorado sanduíche na mesma área na Universidade de Brasília e na Universidade da Califórnia - Santa Bárbara. Além de investir em outros assuntos, o aluno utilizará o código desenvolvido e testado nessa dissertação para investigar outras propriedades de fluidos magnéticos durante o doutorado.

# REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] ODENBACH, S. *Magnetoviscous Effects in Ferrofluids*. Berlin: Springer, 2002.
- [2] ROSENSWEIG, R. E. *Ferrohydrodynamics*. New York: Cambridge University Press, 1985.
- [3] IVANOV, A. O.; KUZNETSOVA, O. B. Magnetic properties of dense ferrofluids: an influence of interparticle correlations. *Physical Review E*, v. 64, n. 041405, 2001.
- [4] ALLEN, M. P.; TILDESLEY, D. J. *Computer Simulation of Liquids*. Oxford: Oxford University Press, 1987.
- [5] MARTSENYUK, M. A.; RAIKHER, Y. L.; SHLIOMIS, M. I. On the kinetics of magnetization of suspensions of ferromagnetic particles. *Soviet Physics JETP*, v. 38, n. 2, 1974.
- [6] BOSSIS, G. et al. Magnetorheology: fluids, structure and rheology. *Stefan Odenbach (Ed.): LNP*, v. 594, p. 202–230, 2002.
- [7] GUERRERO, R. S. et al. Viscoelasticity of mono- and polydisperse inverse ferrofluids. *The Journal of Chemical Physics*, v. 125, 2006.
- [8] BERKOVSKY, B.; BASHTOVOY, V. *Magnetic Fluids and Applications Handbook*. New York: Begel House, 1996.
- [9] LüBBE, A. S.; ALEXIOU, C.; BERGEMANN, C. Clinical applications of magnetic drug targeting. *Journal of Surgical Research*, v. 95, p. 200, 2001.
- [10] BRUSENTOV, N. A. et al. Magnetic fluids hyperthermia of the mouse experimental tumor. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 252, p. 378, 2002.
- [11] CUNHA, F. R.; SOBRAL, Y. D. Characterization of the physical parameters in a process of magnetic separation and pressure driven flows of magnetic fluid in a cylindrical tube. *Physica A*, v. 346, p. 36–64, 2004.

- [12] GONTIJO, R. G.; CUNHA, F. R. Experimental investigation on thermo-magnetic convection in cavities. *J. Nanosci. Nanotechnol - American Scientific Publishers*, v. 12, p. 9198–9207, 2012.
- [13] SCHERER, C.; NETO, A. M. F. Ferrofluids: properties and applications. *Braz. J. Phys.*, v. 35, p. 718–727, 2005.
- [14] KAMIYAMA, S.; ROSENSWEIG, R. E. Magnetic fluids bibliography. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 65, n. 401-401, 1987.
- [15] SHLIOMIS, M. I. Magnetic fluids. *Soviet Physics Usp*, v. 17, n. 2, 1974.
- [16] KAISER, R.; MISKOLCZY, G. Magnetic properties of stable dispersions of subdomain magnetite particles. *Journal of Applied Physics*, v. 41, n. 1064-1072, 1970.
- [17] BLUMS, E.; CEBERS, A.; MAIOROV, M. M. *Magnetic Fluids*. 1. ed. Berlim: Walter de Gruyter, 1997.
- [18] ROSENSWEIG, R. E.; KAISER, R.; MISKOLCZY, G. *Viscosity of Magnetic Fluid in a Magnetic Field*. [S.l.: s.n.], 1968. 680-686 p.
- [19] MCTAGUE, J. P. Magnetoviscosity of magnetic colloids. *The Journal of Chemical Physics*, v. 51, p. 133, 1969.
- [20] BACRI, J. C. et al. Negative-viscosity effect in a magnetic fluid. *Physical Review Letters*, v. 75, p. 2128–2131, 1995.
- [21] ODENBACH, S.; RYLEWICZ, T.; HEYEN, M. A rheometer dedicated for the investigation of viscoelastic effects in commercial magnetic fluids. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 201, p. 155–158, 1998.
- [22] RASA, M. Magnetic properties and magneto-birefringence of magnetic fluids. *The European Physical Journal E*, v. 2, p. 265–275, 2000.
- [23] LUKASHEVICH, M. V. et al. A new method of measuring magnetization of a magnetic fluid not affecting its dispersive composition and calculation of volume distribution function. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 122, p. 139–141, 1993.
- [24] HUANG, W. et al. Study on the synthesis of  $\varepsilon$ -Fe<sub>3</sub>N - based magnetic fluid. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 307, p. 198–204, 2006.
- [25] PSHENICHNIKOV, A. F. Equilibrium magnetization of concentrated ferrocolloids. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 145, p. 319–326, 1994.

- [26] PSHENICHNIKOV, A. F. Magneto-granulometric analysis of concentrated ferrocolloids. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 161, p. 94–102, 1995.
- [27] TSEBERS, A. O. Thermodynamic stability of magnetofluids. *Magneto hydrodynamics*, v. 18, p. 137–142, 1982.
- [28] SHLIOMIS, M. I. Effective viscosity of magnetic suspensions. *Soviet Physics JETP*, v. 34, n. 6, 1972.
- [29] CUNHA, F. R. Fundamentos da hidrodinâmica de fluidos magnéticos. In: *Turbulência Volume 8*. Poli-USP-ABCM, São Paulo: ISBN: 978-85-85769-49-9, p. 257-339, 2012.
- [30] LEEUW, S. W.; PERRAM, J. W.; SMITH, E. R. Simulation of electrostatic systems in periodic boundary conditions. i. lattice sums and dielectric constants. *Proc. R. Soc. Lond. A*, v. 373, p. 27–56, 1980.
- [31] LEEUW, S. W.; PERRAM, J. W.; SMITH, E. R. Simulation of electrostatic systems in periodic boundary conditions. ii. equivalence of boundary conditions. *Proc. R. Soc. Lond. A*, v. 373, p. 57–66, 1980.
- [32] LEEUW, S. W.; PERRAM, J. W.; SMITH, E. R. Simulation of electrostatic systems in periodic boundary conditions. iii. further theory and applications. *Proc. R. Soc. Lond. A*, v. 388, p. 177–193, 1983.
- [33] ADAMS, D. J. Computer simulation study of polar liquids: static and dynamic properties. *Proc. R. Soc. Lond. A*, v. 394, p. 137–160, 1984.
- [34] WANG, Z.; HOLM, C.; MULLER, H. W. Molecular dynamics study on equilibrium magnetization properties and structure of ferrofluids. *Physical Review E*, v. 66, n. 021405, 2002.
- [35] ILG, P.; KROGER, M.; HESS, S. Magnetoviscosity of semidilute ferrofluids and the role of dipolar interactions: comparison of molecular simulations and dynamical mean-field theory. *Physical Review E*, v. 71, n. 031205, 2005.
- [36] IVANOV, A. O. et al. Magnetic properties of polydisperse ferrofluids: a critical comparison between experiment, theory, and computer simulation. *Physical Review E*, v. 75, n. 061405, 2007.
- [37] CUNHA, F. R.; GONTIJO, R. G.; SOBRAL, Y. D. Symmetry breaking of particle trajectories due to magnetic interactions in a dilute suspension. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 326, p. 240–250, 2013.

- [38] GONTIJO, R. G. *Micromecânica e Microhidrodinâmica de Suspensões Magnéticas*. Tese de Doutorado: Universidade de Brasília, 2013.
- [39] ROSA, A. P.; CUNHA, F. R. Calculation of the flow of a magnetic fluid in capillaries tubes with varying magnetization by vorticity. In: *Congress of Mechanical Engineering*. Ribeirão Preto - SP - Brazil: [s.n.], 2013.
- [40] KRAUS, J. D.; CARVER, K. R. *Eletromagnetismo*. Rio de Janeiro: Guanabara Dois, 1978.
- [41] RILEY, K. F.; HOBSON, M. P.; BENCE, S. J. *Mathematical Methods for Physics and Engineering*. Cambridge: Cambridge University Press, 2006.
- [42] BATCHELOR, G. K. *An Introduction to Fluid Dynamics*. Cambridge: Cambridge University Press, 1967.
- [43] SPENCER, A. J. M. *Continuum Mechanics*. New York: Dover Publications, INC., 1980.
- [44] ARIS, R. *Vectors, Tensors and the Basic Equations of Fluid Mechanics*. New York: Dover Publications, INC., 1962.
- [45] EINSTEIN, A. *Investigations on the Theory of the Brownian Movement*. New York: Dover Publications, 1956.
- [46] MCQUAIRE, D. A. *Statistical Mechanics*. New York: Harper and Row, 1976.
- [47] CUNHA, F. R. *Notas de Aula do Curso de Mecânica dos Meios Contínuos*. Brasília: Universidade de Brasília, 2012.
- [48] NÉEL, L. Effect of thermal fluctuations on the magnetization of small particles. *Acad. of Science Paris* 228, 664, 1949.
- [49] IVANOV, A. O.; KUZNETSOVA, O. B. Magnetic properties of dense ferrofluids. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 252, p. 135–137, 2002.
- [50] SHLIOMIS, M. I. Ferrohydrodynamics: testing a third magnetization equation. *Physical Review E*, v. 64, n. 060501, 2001.
- [51] SARTORATTO, P. P. C. *Comunicação Privada, Laboratório de Química dos Materiais*. UFG: Instituto de Química., 2012.
- [52] BIRD, R. B.; ARMSTRONG, R. C.; HASSAGER, O. *Dynamics of Polymeric Liquids. Volume I: Fluid Mechanics*. New York: John Wiley and Sons, Inc., 1987.

- [53] FRENKEL, D.; SMIT, B. *Understanding Molecular Simulation*. San Diego: Academic Press, 1987.
- [54] HUKU, B.; LUCKE, M. Magnetic properties of colloidal suspensions of interacting magnetic particles. *Reports on Progress in Physics*, v. 67, p. 1731–1768, 2004.
- [55] MCWHIRTER, J. L.; PATEY, G. N. Nonequilibrium molecular dynamics simulations of a simple dipolar fluid under shear flow. *The Journal of Chemical Physics*, v. 117, n. 2747, 2002.
- [56] EWALD, P. Die berechnung optischer und elektrostatischer gitterpotentiale. *Ann. Phys.*, v. 64, p. 253–287, 1921.
- [57] MCDONALD, I. R. Molecular liquids: orientational order and dielectric properties. In: *Enrico Fermi Summer School*. [S.l.: s.n.], 1986. p. 341–370.
- [58] WANG, Z.; HOLM, C.; MULLER, H. W. Boundary condition effects in the simulation study of equilibrium properties of magnetic dipolar fluids. *The Journal of Chemical Physics*, v. 119, n. 1, 2003.
- [59] HEYES, D. M. Electrostatic potentials and fields in infinite point charge lattices. *Journal of Chemical Physics*, v. 82, p. 285–301, 1981.
- [60] GIBBON, P.; SUTMANN, G. Long-range interactions in many-particle simulation. *Quantum Simulations of Complex Many-Body Systems From Theory to Algorithms*, v. 10, p. 467–506, 2002.
- [61] JEFFREYS, H.; JEFFREYS, B. S. *Methods of Mathematical Physics*. Cambridge: Cambridge University Press, 1950.
- [62] WANG, Z.; HOLM, C. Estimate of the cutoff errors in the ewald summation for dipolar systems. *The Journal of Chemical Physics*, v. 115, n. 14, 2001.
- [63] ONSAGER, L. Electric moments of molecules in liquids. *Journal of the American Chemical Society*, v. 58, p. 1486–1493, 1936.
- [64] VERSELY, F. J. N-particle dynamics of polarizable stockmayer-type molecules. *Journal of Computational Physics*, v. 24, p. 361–371, 1976.
- [65] BARKER, J. A.; WATTS, R. O. Monte carlo studies of the dielectric properties of water-like models. *Molecular Physics*, v. 26, p. 789–792, 1973.

- [66] NYMAND, T. M.; LINSE, P. Ewald summation and reaction field methods for potentials with atomic charges, dipoles, and polarizabilities. *The Journal of Chemical Physics*, v. 112, n. 6152-6160, 2000.
- [67] GRAY, C. G. et al. Computer simulation of dipolar fluids. dependence of the dielectric constant on system size: A comparative study of ewald sum and reaction field approaches. *The Journal of Chemical Physics*, v. 85, p. 4-6, 1986.
- [68] CUNHA, F. R.; SOUZA, A. J.; HINCH, E. J. Numerical simulation of velocity fluctuations and dispersion of sedimentating particles. *Chem. Eng. Comm.*, v. 189, p. 1105-1129, 2002.
- [69] CUNHA, F. R. et al. Modeling and direct simulation of velocity fluctuations and particle-velocity correlations in sedimentation. *Journal of Fluids Engineering*, v. 124, p. 957-968, 2002.
- [70] ABADE, G. C.; CUNHA, F. R. Computer simulation of particle aggregates during sedimentation. *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.*, v. 196, p. 4597-4612, 2007.
- [71] CUNHA, F. R.; LOEWENBERG, M. A study of emulsion expansion by a boundary integral method. *Mechanics Research Communications*, v. 30, p. 639-649, 2003.
- [72] ERMAK, D. L.; MCCAMMON, J. A. Brownian dynamics with hydrodynamic interactions. *The Journal of Chemical Physics*, v. 69, p. 1351-1360, 1978.
- [73] NEUMANN, J. V. Various techniques used in connection with random digits. *US Nat. Bur. stand. appl. Math.*, v. 12, p. 36-38, 1951.
- [74] HANSEN, J. P.; MCDONALD, I. R. *Theory of Simple Liquids*. New York: Academic Press, 1986.
- [75] RALLISON, J. M.; HINCH, E. H. The effect of particle interactions on dynamic light scattering from a dilute suspension. *J. Fluid Mech.*, v. 167, p. 131-168, 1986.
- [76] ABADE, G. C. *Mecânica da Sedimentação de Partículas Interagindo Hidrodinamicamente*. Dissertação de Mestrado: Universidade de Brasília, 2005.
- [77] LADD, A. J. C. Dynamical simulations of sedimenting spheres. *Physics of Fluids A: Fluid Dynamics*, v. 5, p. 299-310, 1993.
- [78] CHANTRELL, R. W. Agglomerate formation in a magnetic fluid. *Journal of Applied Physics*, v. 53, n. 2742, 1982.

- [79] CHANTRELL, R. W. et al. Calculations of the susceptibility of interacting superparamagnetic particles. *Physical Review B*, v. 63, n. 024410, 2000.
- [80] SHLIOMIS, M. I. Ferrohydrodynamics: retrospective and issues. *Stefan Odenbach (Ed.): LNP 594, pp.85-111*, 2002.

# ANEXOS

# I. FUNÇÃO DE CORRELAÇÃO COM SIMETRIA AXIAL

Quando uma suspensão está em equilíbrio e sofre a ação de um campo magnético externo uniforme  $\mathbf{H}$ , a função  $g(\mathbf{r})$  para essa suspensão é axissimétrica, sendo o eixo de simetria na direção  $\mathbf{e}_H = \mathbf{H}/H$ . Desta forma,  $g(\mathbf{r}) = g(r, \theta)$ , em que  $\theta$  é o ângulo entre  $\mathbf{r}$  e  $\mathbf{e}_H$ .

A função  $g(r, \theta)$  pode ser expandida em polinômios de Legendre:

$$g(r, \theta) = g_0(r) + \sum_{n=1}^{\infty} g_n(r) P_n(\cos \theta) , \quad (\text{I.1})$$

com coeficientes

$$g_n(r) = \frac{2n+1}{2} \int_0^\pi P_n(\cos \theta) g(r, \theta) \sin \theta d\theta , \quad n = 1, 2, \dots . \quad (\text{I.2})$$

Quando o sistema é isotrópico (sem a ação de campo magnético) as funções  $g_n(r)$  para  $n \geq 1$  se anulam e  $g(r) = g_0(r)$ . Já quando o sistema está sob a ação de um campo apenas as funções  $g_n(r)$  com  $n$  ímpares se anulam, devido à paridade da função  $\cos \theta$  relacionada à simetria do sistema.

A seguir é feito um desenvolvimento para que os coeficientes  $g_n(r)$  dados pela equação (I.2) possam ser calculados numericamente. Dado que  $\sin \theta = -d(\cos \theta)$ , a integral da equação (I.2) pode ser escrita como:

$$I(r) = \int_{-1}^1 f(\cos \theta) g(r, \theta) d(\cos \theta) . \quad (\text{I.3})$$

De acordo com a equação (6.63), podemos escrever:

$$g(r, \theta) = \frac{1}{2\pi} \frac{V}{N^2} \sum'_{i,j} \frac{1}{r^2} \delta(r - r_{ij}) \delta(\cos \theta - \cos \theta_{ij}) . \quad (\text{I.4})$$

A substituição da equação (I.4) em (I.3) resulta:

$$I(r, \mathbf{X}) = \frac{1}{2\pi} \frac{V}{N^2} \sum'_{i,j} \frac{1}{r^2} \delta(r - r_{ij}) f(\cos \theta_{ij}) , \quad (\text{I.5})$$

O argumento  $\mathbf{X}$  indica que a integral refere-se a uma configuração específica. Portanto,  $I(r)$  é obtida por um média de conjunto de  $I(r, \mathbf{X})$ , ou seja,  $I(r) = \langle I(r, \mathbf{X}) \rangle$ . A integral  $I(r, \mathbf{X})$  é aproximada numericamente pelo seu valor médio avaliado sobre uma casca esférica delgada de raio médio  $r$  e espessura  $2\epsilon$  :

$$I(r, \mathbf{X}) \approx \bar{I}(r, \epsilon, \mathbf{X}) \equiv \frac{1}{\Omega(r, \epsilon)} \int_{r-\epsilon}^{r+\epsilon} I(r', \mathbf{X}) dr' , \quad (\text{I.6})$$

em que

$$\Omega(r, \epsilon) = \int_{r-\epsilon}^{r+\epsilon} (r')^2 dr' = \frac{1}{3} [(r + \epsilon)^3 - (r - \epsilon)^3] . \quad (\text{I.7})$$

Avaliando a integral da equação (I.6) sobre uma média obtemos uma aproximação numérica para  $I(r)$ :

$$I(r) \approx \bar{I}(r, \epsilon, \mathbf{X}) = \frac{1}{2\pi} \frac{1}{\Omega(r, \epsilon)} \frac{V}{N^2} \left\langle \sum'_{i,j} \Theta(\epsilon - |r_{ij} - r|) f(\cos \theta_{ij}) \right\rangle . \quad (\text{I.8})$$

Para calcular os coeficientes da expansão de  $g(r, \theta)$  em termos dos polinômios de Legendre é feita a substituição

$$f(\cos \theta) = \frac{2n + 1}{2} P_n(\cos \theta) \quad (\text{I.9})$$

na equação (I.8), resultando:

$$g_n(r) = \left( \frac{2n + 1}{2} \right) \frac{1}{2\pi} \frac{1}{\Omega(r, \epsilon)} \frac{V}{N^2} \sum'_{i,j} \Theta(\epsilon - |r_{ij} - r|) P_n(\cos \theta_{ij}) , \quad (\text{I.10})$$

em que

$$\Theta(\epsilon - |r_{ij} - r|) = \int_{r_m - \epsilon}^{r_m + \epsilon} \delta(r - r_{ij}) \quad (\text{I.11})$$

é a função Heavside ou função degrau, que vale 1 se  $r_{ij}$  está no intervalo  $(r_m - \epsilon, r_m + \epsilon]$  e 0 caso contrário.

Considerando a suspensão magnética com um campo magnético externo uniforme aplicado,  $\cos \theta_{ij} = \hat{\mathbf{r}}_{ij} \cdot \mathbf{e}_H$ . A parte isotrópica, com  $n = 0$  e  $P_0(\cos \theta) = 1$ , é aproximada por:

$$g_0 \approx \frac{1}{4\pi} \frac{1}{\Omega(r, \epsilon)} \frac{V}{N^2} \sum'_{i,j} \Theta(\epsilon - |r_{ij} - r|) . \quad (\text{I.12})$$