



Ministério da
Ciência e Tecnologia



INPE-15765-TDI/1505

**SIMULAÇÃO, ANÁLISE E CARACTERIZAÇÃO
COMPUTACIONAL DE PADRÕES DE FINGERING EM
DESLOCAMENTOS DE FLUIDOS EM MEIOS POROSOS**

Mariana Pelissari Monteiro Aguiar Baroni

Tese de Doutorado do Curso de Pós-Graduação em Computação Aplicada,
orientada pelos Drs. Reinaldo Roberto Rosa, Antônio Ferreira da Silva, e Anne De
Wit, aprovada em 20 de abril de 2009.

Registro do documento original:

<<http://urlib.net/sid.inpe.br/mtc-m18@80/2009/03.24.13.25>> (3503 KB)

INPE
São José dos Campos
2009

PUBLICADO POR:

Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais - INPE

Gabinete do Diretor (GB)

Serviço de Informação e Documentação (SID)

Caixa Postal 515 - CEP 12.245-970

São José dos Campos - SP - Brasil

Tel.:(012) 3945-6911/6923

Fax: (012) 3945-6919

E-mail: pubtc@sid.inpe.br

CONSELHO DE EDITORAÇÃO:**Presidente:**

Dr. Gerald Jean Francis Banon - Coordenação Observação da Terra (OBT)

Membros:

Dr^a Maria do Carmo de Andrade Nono - Conselho de Pós-Graduação

Dr. Haroldo Fraga de Campos Velho - Centro de Tecnologias Especiais (CTE)

Dr^a Inez Staciarini Batista - Coordenação Ciências Espaciais e Atmosféricas (CEA)

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Dr. Ralf Gielow - Centro de Previsão de Tempo e Estudos Climáticos (CPT)

Dr. Wilson Yamaguti - Coordenação Engenharia e Tecnologia Espacial (ETE)

BIBLIOTECA DIGITAL:

Dr. Gerald Jean Francis Banon - Coordenação de Observação da Terra (OBT)

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Jefferson Andrade Ancelmo - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Simone A. Del-Ducca Barbedo - Serviço de Informação e Documentação (SID)

REVISÃO E NORMALIZAÇÃO DOCUMENTÁRIA:

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Marilúcia Santos Melo Cid - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Yolanda Ribeiro da Silva Souza - Serviço de Informação e Documentação (SID)

EDITORAÇÃO ELETRÔNICA:

Viveca Sant´Ana Lemos - Serviço de Informação e Documentação (SID)



Ministério da
Ciência e Tecnologia



INPE-15765-TDI/1505

**SIMULAÇÃO, ANÁLISE E CARACTERIZAÇÃO
COMPUTACIONAL DE PADRÕES DE FINGERING EM
DESLOCAMENTOS DE FLUIDOS EM MEIOS POROSOS**

Mariana Pelissari Monteiro Aguiar Baroni

Tese de Doutorado do Curso de Pós-Graduação em Computação Aplicada,
orientada pelos Drs. Reinaldo Roberto Rosa, Antônio Ferreira da Silva, e Anne De
Wit, aprovada em 20 de abril de 2009.

Registro do documento original:

<<http://urlib.net/sid.inpe.br/mtc-m18@80/2009/03.24.13.25>> (3503 KB)

INPE
São José dos Campos
2009

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação (CIP)

Baroni, Mariana Pelissari Monteiro Aguiar.

B268s Simulação, análise e caracterização computacional de padrões de fingering em deslocamentos de fluidos em meios porosos / Mariana Pelissari Monteiro Aguiar Baroni. – São José dos Campos : INPE, 2009.

123p. ; (INPE-15765-TDI/1505)

Tese (Doutorado em Computação Aplicada) – Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais, São José dos Campos, 2009.

Orientadores : Drs. Reinaldo Roberto Rosa, Antônio Ferreira da Silva, e Anne de Wit.

1. Caracterização computacional. 2. Instabilidade de Rayleigh-Taylor. 3. Instabilidade de Sauffman-Taylor. 4. Análise de padrões gradientes. 5. Instabilidade hidrodinâmicas. I.Título.

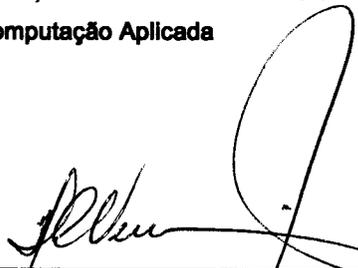
CDU 532.546

Copyright © 2009 do MCT/INPE. Nenhuma parte desta publicação pode ser reproduzida, armazenada em um sistema de recuperação, ou transmitida sob qualquer forma ou por qualquer meio, eletrônico, mecânico, fotográfico, reprográfico, de microfilmagem ou outros, sem a permissão escrita do INPE, com exceção de qualquer material fornecido especificamente com o propósito de ser entrado e executado num sistema computacional, para o uso exclusivo do leitor da obra.

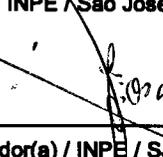
Copyright © 2009 by MCT/INPE. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system, or transmitted in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording, microfilming, or otherwise, without written permission from INPE, with the exception of any material supplied specifically for the purpose of being entered and executed on a computer system, for exclusive use of the reader of the work.

Aprovado (a) pela Banca Examinadora
em cumprimento ao requisito exigido para
obtenção do Título de Doutor(a) em
Computação Aplicada

Dr. Haroldo Fraga de Campos Velho


Presidente / INPE / São José dos Campos - SP

Dr. Reinaldo Roberto Rosa


Orientador(a) / INPE / SJC Campos - SP

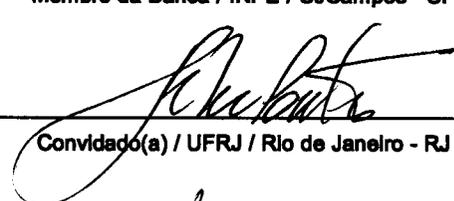
Dr. Antônio Ferreira da Silva


Orientador(a) / UFBA / Salvador - BA

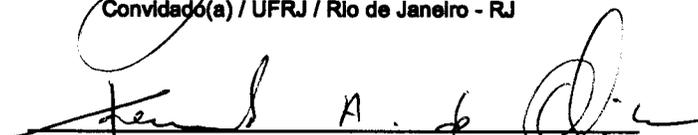
Dr. Joaquim José Barroso de Castro

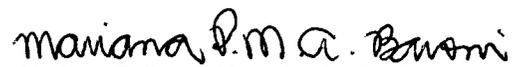

Membro da Banca / INPE / SJC Campos - SP

Dr. José da Rocha Miranda Pontes


Convidado(a) / UFRJ / Rio de Janeiro - RJ

Dr. Fernando Albuquerque de Oliveira


Convidado(a) / UNB / Brasília - DF


Aluno (a): Mariana Pelissari Monteiro Aguiar Baroni

São José dos Campos, 20 de abril de 2009

*“Não sei por que todos me adoram se
ninguém entende minhas idéias.”*

ALBERT EINSTEIN

*A meus pais
Eliana e Osvaldo...*

AGRADECIMENTOS

A Deus sobre todas as coisas.

A todas pessoas que me ajudaram a vencer mais esta etapa da vida e que de alguma maneira contribuíram para a realização deste trabalho. Peço desculpas antecipadamente àqueles que por algum motivo esqueço de citar neste espaço.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Tecnológico pelo auxílio financeiro de bolsa de doutorado no país (GD n° 141173/2005-0), ao auxílio financeiro de bolsa de estágio de doutorado no exterior (SWE n° 200524/2007-0) e aceitação do pedido de permanência adicional no exterior sem ônus a essa instituição.

À *Université Libre de Bruxelles* pelo auxílio financeiro durante o período de permanência adicional no exterior.

À família, sempre presente em todos os momentos: minha mãe, que é minha heroína e a pessoa mais paciente do mundo, a meu pai, que é o mais impaciente mas o homem mais guerreiro que já conheci, e a meus irmãos que sempre me apoiaram. Agradeço também aos outros membros da enorme família Pelissari/Monteiro e da família Aguiar/Baroni.

Ao meu namorado, amigo, companheiro, parceiro, conselheiro e homem mais lindo do mundo: Daniel. Agradeço também aos meus sogros, cunhados e Ezinho pela acolhida e fins de semana maravilhosos.

À dedicação, atenção, parceria, discussões científicas e aos conhecimentos herdados dos queridos orientadores: Prof. Dr. Reinaldo R. Rosa e Prof. Dr. Antônio Ferreira da Silva. Agradeço a eles também pela confiança depositada na realização deste trabalho e na representação de nosso grupo na ULB.

Ao Prof. Dr. José Pontes da COPPE/UFRJ pelas várias discussões sobre métodos numéricos sempre produtivas, e também pela indicação a Prof. Dra. Anne De Wit, e a confiança e generosidade em todos os momentos que fizeram parte do estágio de doutorando.

Agradeço à Prof^a. Dr^a. Anne De Wit pelo acolhimento no seu grupo, dedicação, atenção, presença e personalidade excepcional que demonstrou tanto pessoalmente quanto profissionalmente. Ao seu grande conhecimento que humildemente me trans-

mitiu e que foram essenciais no desenvolvimento desta tese.

Aos comentários fundamentais dos Profs. Drs. Fernando Ramos, Haroldo F. de Campos Velho, N. L. Vijaykumar (Vijay) e José Demisio Simões da Silva do INPE, e aos Profs. Drs. Pierre Gaspard, Pierre Colinet e Pierre Borckmans da ULB.

Aos amigos do INPE por todos os momentos, companheirismo e parceria: Karleyne, Carla, Bira, Eduardo Luz, Laurita (“gêmula”), Roberta, Aline, Cristiane, Heloisa, Sóstenes, Rudinei, Plínio, Flávia, Fabiana, Thalita, Ernesto, Rodolfo, Helaine, Rosângela, Ana Paula, Elcio, Adriana Mattedi, Adriana e Andréia, Roberto, Isabela, Ramon, Francisco “Panchito”... (se eu esqueci de mencionar alguém, desculpe-me)!

Aos amigos e Profs. Drs. da UFBA: Tiago, Luis, Prof. I. M. Pepe e Prof. Dennis G. F. David; UFPR: Carla e Profa. Lucimara S. Roman; UFC: Erivelton, Daniela, Denise, Prof. Jeanlex S. de Sousa, Prof. Carlos Alberto S. de Almeida e Prof. José Alexander de King Freire (in memorium); e UNESP: Gilcilene, Marcela, Prof. Silvio R. Teixeira e Prof. Angel Fidel Vilche Peña, por discussões fundamentais e conversas produtivas ou não.

Aos amigos e Profs. da ULB: Jessica D’Hernoncourt, Laurence Rongy, Renaud Maes, Thomas Gérard, Pauline Assemat, Philipp Trevelyan, Manoranjan Mishra, Christophe Almarcha, Yannick De Decker, Yuichiro Nagatsu, Prof. René Lefever e Prof. Grégoire Nicolis por todos os momentos de descontração e conversas formais e informais que sempre geraram novas idéias.

Agradeço as amigas “PPG” Mestre e quase Dra. Luciana Magalhães e Prof. Dra. Luciana Angélica pelos momentos inesquecíveis, conquistas, companheirismo, parceria científica e pela amizade sincera que torna minha vida ainda mais feliz. Agradeço principalmente à Lu Magal por me proporcionar momentos inesquecíveis com o Mateusinho e por se tornar uma amiga-irmã.

Às secretarias e ex-secretárias da CAP: Amanda, Fabiana, Neusa, Vanessa, Claudia, Monalisa e Cris. Agradeço também aos demais professores da CAP, aos funcionários do CCS e aos amigos dos laboratórios do LAC e CCS.

RESUMO

Neste trabalho, os padrões relacionados ao processo de deslocamento de uma interface entre dois fluidos de mobilidades diferentes são estudados computacionalmente. Na literatura, o processo de formação desses padrões é conhecido como *fingering*, um tipo de instabilidade dinâmica presente na interface entre dois fluidos miscíveis, onde classifica-se o surgimento de *fingers* em dois tipos: *fingering* de densidade e *fingering* de viscosidade. Essas instabilidades podem ser analisadas utilizando perfis unidimensionais de concentração resultantes da média da matriz de concentração nas direções transversal e longitudinal a propagação da interface. Na primeira parte deste trabalho, o objetivo principal é estudar comparativamente esses dois tipos de *fingering* a partir dos seus perfis de concentração unidimensionais. Para isso, utiliza-se além de medidas estruturais usuais como o comprimento de mistura e o número de onda médio, o coeficiente de assimetria gradiente como medida das assimetrias bilaterais tipicamente observadas nos perfis de concentração média. Os resultados apontam coerência com a análise clássica de padrões de *fingering* e evidenciam similaridades e diferenças entre os dois tipos de instabilidades indicando o momento em que ocorrem no regime não-linear. Essa análise é aplicada de forma inédita aos padrões de DF variando a aceleração da gravidade presente no modelo. Para essa análise, os resultados indicam que o processo de *fingering* resulta diferentes padrões para diferentes valores da aceleração gravitacional. Na segunda parte do trabalho, analisa-se um sistema que apresenta o fenômeno de *fingering* segundo o grau de complexidade estrutural. A interação entre a dinâmica de coalescência, característica da instabilidade de Rayleigh-Taylor, e o número fixo de comprimento de onda, característica da instabilidade difusiva, podem levar a evolução de padrões espaço-temporais estruturalmente complexos. De um modo geral, todos os resultados, baseados em medidas espectrais, identificam as transições para o regime fortemente não-linear, onde a instabilidade difusiva aparece como a principal responsável pelo regime de caos espaço-temporal identificado nas análises. Como objetivo fundamental, este trabalho contribui com novas simulações e medidas estruturais de padrões de *fingering* em meios porosos, propiciando uma nova caracterização dos processos não-lineares envolvidos, onde a complexidade estrutural apresenta dependência direta da escolha de parâmetros físicos constitutivos.

SIMULATION, ANALYSIS AND COMPUTATIONAL CHARACTERIZATION OF FINGERING PATTERNS IN FLUIDS DISPLACEMENT ON POROUS MEDIA

ABSTRACT

In this work, the patterns related to the displacement process of an interface between two fluids of different mobilities are studied computationally. In the literature, the formation process of these patterns is known as fingering, a type of dynamic instability in the interface between two miscible fluids, where the fingers are classified in two types: density fingering and viscous fingering. These instabilities can be analyzed using $1D$ concentration profiles from the average concentration on the concentration matrix in transverse and longitudinal directions of interface propagation. In the first part of this work, the main goal is to study comparatively these two types of fingering from its $1D$ averaged concentration profiles. To do this, it is used beyond usual structural measures as the mixing length and mean wave number, the gradient asymmetry coefficient as a measure of bilateral asymmetries typically found in the averaged concentration profiles. The results show consistency with the classical analysis of fingering patterns and highlight the similarities and differences between the two types of instabilities indicating the moment that it occur in the nonlinear regime. This analysis is applied to DF patterns, in innovative way, varying the gravity acceleration in this model. For this analysis, the results indicate that the fingering formation results in different patterns for different values of gravitational acceleration. In the second part of work, it is analyzed a system which presents the fingering phenomenon according to degree of structural complexity. The interaction between the dynamics of coalescence, characteristic of the Rayleigh-Taylor instability, and the number of wavelength, characteristic of diffusive instability, may lead to development of space-time patterns structurally complex. In a general way, all results based on spectral measures, identify the transitions to the strongly nonlinear regime where the diffusive instability appears as the main responsible for the spatio-temporal chaos identified in the analysis. As a fundamental goal, this study contributes to new simulations and structural measures of fingering patterns in porous media, providing a new characterization of nonlinear processes involved, where the structural complexity shows direct dependence on the choice of constitutive physical parameters.

SUMÁRIO

Pág.

LISTA DE FIGURAS

1	INTRODUÇÃO	23
1.1	Fenômeno de <i>Fingering</i>	23
1.2	<i>Fingering</i> de Viscosidade e <i>Fingering</i> de Densidade	24
1.3	A célula de Hele-Shaw e a Lei de Darcy	27
1.4	Motivação e Objetivo Geral	29
1.5	Estrutura do Trabalho	30
2	SISTEMA DIFUSIVO-ADVECTIVO	33
2.1	Modelo do Sistema	34
2.1.1	<i>Fingering</i> de Densidade	35
2.1.2	<i>Fingering</i> de Viscosidade	36
2.1.3	Simulações Numéricas	37
2.2	Sobre os Dados e Medidas para Análise	38
2.2.1	Perfis de Concentração Média	38
2.2.2	Medidas Quantitativas Clássicas	41
2.2.3	Coefficiente de Assimetria Gradiente	43
2.2.4	Razão de Aspecto de Assimetria	50
2.3	Resultados	50
2.3.1	Caso 1: $R = R_a = 1$	51
2.3.2	Caso 2: $R = R_a = 2$	56
2.3.3	Caso 3: $R = R_a = 3$	61
2.3.4	Aplicação em Ciência Espacial	66
2.4	Síntese dos Resultados	71
3	SISTEMA REATIVO-DIFUSIVO-ADVECTIVO	73
3.1	Modelo do sistema	74
3.1.1	Mapas Espaço-Temporais	76
3.1.2	Simulações Numéricas	78
3.2	Sobre os Dados e Medidas para Análise	78
3.2.1	Espectro de Potência	78

3.2.2	Entropia Espectral	79
3.2.3	Função de Autocorrelação Espacial	79
3.3	Resultados	80
3.3.1	Instabilidades Puramente Difusivas: $R_a = R_b = 0$	80
3.3.2	Densidade diminui durante a reação: $R_a > R_b$	84
3.3.3	Densidade aumenta durante a reação: $R_a < R_b$	88
3.4	Síntese dos Resultados	93
4	CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS	95
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	101
A	APÊNDICE A - ASPECTOS COMPUTACIONAIS	109
A.1	Pseudo-Algoritmos	109
A.2	O Método Pseudo-Espectral	110
B	APÊNDICE B - PADRÕES CANÔNICOS DE CRESCIMENTO DE INTERFACES E TÉCNICAS DE CARACTERIZAÇÃO	113
B.1	Modelo de Formação de Padrões: A equação de KPZ	113
B.1.1	Validação do Algoritmo	115
B.2	Análise dos Perfis de Crescimento	116
C	APÊNDICE C - ANÁLISE DE ESTABILIDADE LINEAR	119
A	ANEXO A - LISTA DE PUBLICAÇÕES	123

LISTA DE FIGURAS

	<u>Pág.</u>
1.1 Fenômeno de <i>fingering</i> entre dois fluidos miscíveis. O fluido mais escuro é mais viscoso que o fluido mais claro.	23
1.2 <i>Fingering</i> de densidade na ausência (a) e na presença (b) de reações químicas.	26
1.3 Representação de uma célula básica de Hele-Shaw usada para investigação de fenômenos de interação na interface entre os materiais (fluido, grão, gás, etc.).	28
1.4 Representação esquemática da deformação de uma interface pelo mecanismo de <i>fingering</i>	28
2.1 Exemplos de padrões de VF (quadro da esquerda) e de DF (quadro da direita) no regime não-linear obtidos de simulações numéricas onde $R = R_a = 3$ e $t = 2000$. Note que, o padrão de VF (originalmente na horizontal) é posto na vertical propositadamente para ser comparado com o padrão de DF.	33
2.2 (a) Esboço do modelo de um sistema usado para <i>fingering</i> de densidade (b) e <i>fingering</i> de viscosidade.	35
2.3 Exemplo da não dependência ao refinamento temporal na simulação de padrões de <i>fingering</i> (VF) para $R = 1$: (a) matriz de concentração em $t = 3000$, (b) comprimento de mistura e (c) número de onda médio.	38
2.4 Evolução temporal de (a) <i>fingering</i> de densidade (250, 500, 1000, 1500, 1750, 2000) correspondente perfis de concentração média (b) longitudinal and (c) transversal para um sistema onde $R_a = 3$	39
2.5 Evolução temporal de (a) <i>fingering</i> de viscosidade ($t = 250, 500, 1000, 1500, 1750, 2000$) correspondente perfis de concentração média (b) longitudinal and (c) transversal para um sistema onde $R = 3$	40
2.6 Comprimento de mistura em função do tempo correspondente a dinâmica não-linear das Figuras 2.5(a) e 2.4(a).	42
2.7 Número de onda médio em função do tempo correspondente a dinâmica não-linear das Figuras 2.5(a) e 2.4(a).	43
2.8 Exemplo da obtenção da grade gradiente a partir de (a) uma matriz de amplitudes: (b) cálculo das diferenças na direção x , (c) cálculo das diferenças na direção y , (d) grade gradiente, e (e) triangulação de Delaunay.	44

2.9	Três exemplos de perfis de amplitude compostos por 100 pontos e suas respectivas grades gradientes 10×10	45
2.10	Metodologia de mapeamento de um perfil de concentração média: $\langle c(x, t) \rangle$ ou $\langle c(y, t) \rangle$ consistindo de um vetor de N posições para uma matriz $\sqrt{N} \times \sqrt{N}$. O exemplo dado aqui para $\langle c(x, t) \rangle$ tem 1024 pontos distribuído em uma matriz 32×32	46
2.11	Um exemplo arbitrário da triangulação de Delaunay entre quatro vetores e sua correspondente grade gradiente.	46
2.12	As respectivas grades gradientes assimétricas e padrões de triangulação para os perfis de amplitudes apresentados nas Figuras 2.9(b) e 2.9(c).	47
2.13	Barra de erro dos valores de G_A para 15 diferentes realizações da aplicação do GPA nos perfis de concentração média (a) transversal e (b) longitudinal.	49
2.14	Desvio padrão para aplicação do GPA nos perfis de concentração média (a) transversal e (b) longitudinal.	49
2.15	(a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 3000, 6000, 9000$ e 12000) para DF quando $R_a = 1$ e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.	51
2.16	(a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 3000, 6000, 9000$ e 12000) para VF quando $R = 1$, e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.	52
2.17	Evolução temporal do coeficiente de assimetria gradiente dos perfis de concentração média (a) transversal e (c) longitudinal, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.15 e 2.16.	53
2.18	Evolução temporal da medida (a) de comprimento de mistura e (c) número de onda médio, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.15 e 2.16.	54
2.19	Cálculo da (a) média temporal e (b) espectro de potência da razão de aspecto assimétrica para os perfis de concentração média longitudinal para o sistema quando $R = R_a = 1$	56
2.20	(a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 1000, 2000, 3000$ e 4000) para DF quando $R_a = 2$ e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.	57
2.21	(a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 3000, 6000, 9000$ e 12000) para VF quando $R = 2$, e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.	58

2.22	Evolução temporal do coeficiente de assimetria gradiente dos perfis de concentração média (a) transversal e (c) longitudinal, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.20 e 2.21.	59
2.23	Evolução temporal da medida (a) de comprimento de mistura e (c) número de onda médio, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.20 e 2.21.	60
2.24	Cálculo da (a) média temporal e (b) espectro de potência da razão de aspecto assimétrica para os perfis de concentração média longitudinal para o sistema quando $R = R_a = 2$.	61
2.25	(a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 250, 500, 1000$ e 2000) para DF quando $R_a = 3$ e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.	62
2.26	(a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 250, 500, 1000$ e 2000) para VF quando $R = 3$, e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.	63
2.27	Evolução temporal do coeficiente de assimetria gradiente dos perfis de concentração média (a) transversal e (c) longitudinal, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.25 e 2.26.	64
2.28	Evolução temporal da medida (a) de comprimento de mistura e (c) número de onda médio, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.25 e 2.26.	65
2.29	Cálculo da (a) média temporal e (b) espectro de potência da razão de aspecto assimétrica para os perfis de concentração média longitudinal para o sistema quando $R = R_a = 3$.	65
2.30	Média das diferenças entre as instabilidades com relação a $R = R_a$ para o cálculo de G_A para os perfis de concentração média (a) transversais e (b) longitudinais, (c) comprimento de mistura e (d) número de onda médio.	66
2.31	Variação de R_a para os corpos celestes da Tabela 2.1.	67
2.32	Cálculo do coeficiente de assimetria gradiente para os corpos celestes da Tabela 2.1.	68
2.33	Matrizes de concentração em $t = 4000$ para os corpos celestes (a) Mercúrio, Marte, Plutão e Lua, e seus respectivos perfis de concentração de média (b) longitudinal e (c) transversal, e cálculo do coeficiente de assimetria gradiente dos perfis de concentração média (d) longitudinal e (e) transversal desses corpos.	69

2.34	Matrizes de concentração em $t = 4000$ para os corpos celestes (a) Terra, Vênus, Jupiter, Saturno, Urano, Netuno, respectivamente, e seus respectivos perfis de concentração de média (b) longitudinal e (c) transversal, e cálculo do coeficiente de assimetria gradiente dos perfis de concentração média (d) longitudinal e (e) transversal desses corpos.	70
3.1	Exemplo de interface onde ocorre a (a) instabilidade difusiva e onde ocorre a (b) instabilidade de Rayleigh-Taylor.	73
3.2	Esboço do sistema.	74
3.3	Esquema de obtenção dos mapas espaço-temporais: a partir da matriz de concentração calcula-se o perfil de concentração média longitudinal e localiza-se os máximos e mínimos deste perfil. As posições destes são marcadas no mapa onde no tempo observa-se a evolução dos <i>fingers</i>	77
3.4	Mapas espaço-temporais de padrões de <i>fingering</i> : (a) tendência de formação de um único <i>finger</i> , e (b) dinâmica complexa de surgimentos e desaparecimentos de <i>fingers</i>	77
3.5	Mapas espaço-temporais das posições de máximo (preto) e de mínimo (cinza) do perfil médio longitudinal para diferentes valores de D e $R_a = R_b = 0$ considerando as frentes ascendentes de A variando de $t = 0$ a $t = 5600$. No topo de cada mapa, a matriz de concentração de A do sistema é apresentada no tempo $t = 5000$	81
3.6	Média temporal do espectro de potência para a frente ascendente do reagente A para instabilidade puramente difusiva: (a) $D > D_c$ e (b) $D < D_c$	82
3.7	Média temporal da entropia espectral da frente ascendente (curva azul) e da frente descendente (curva vermelha) do reagente A para instabilidade puramente difusiva.	83
3.8	Cálculo da função de autocorrelação da frente ascendente do reagente A para instabilidade puramente difusiva.	83
3.9	Mapas espaço-temporais das posições de máximo (linhas pretas) e mínimo (linhas cinza) do perfil de concentração média longitudinal em função do tempo quando a densidade diminui durante a reação para diferentes valores de D considerando as frentes ascendentes de A variando de $t = 0$ a $t = 5600$. No topo dos mapas, apresenta-se as matrizes de concentração de A no tempo $t = 5000$	85

3.10	Mapas espaço-temporais das posições de máximo (linhas pretas) e mínimo (linhas cinza) do perfil de concentração média longitudinal em função do tempo quando a densidade diminui durante a reação para diferentes valores de D considerando as frentes descendentes de A variando de $t = 0$ a $t = 5600$. No topo dos mapas, apresenta-se as matrizes de concentração de A no tempo $t = 5000$	86
3.11	Média temporal do espectro de potência para (a) a frente ascendente e para (b) a frente descendente do reagente A quando $R_a > R_b$	87
3.12	Média temporal da entropia espectral da frente ascendente (curva vermelha) e da frente descendente (curva azul) do reagente A quando $R_a > R_b$	87
3.13	Cálculo da função de autocorrelação da (a) frente ascendente e da (b) frente descendente do reagente A quando $R_a > R_b$	88
3.14	Mapas espaço-temporais das posições de máximo (linhas pretas) e mínimo (linhas cinza) do perfil de concentração média longitudinal em função do tempo quando a densidade aumenta durante a reação para diferentes valores de D considerando as frentes ascendentes de A variando de $t = 0$ a $t = 5600$. No topo dos mapas, apresenta-se as matrizes de concentração de A no tempo $t = 5000$	89
3.15	Mapas espaço-temporais das posições de máximo (linhas pretas) e mínimo (linhas cinza) do perfil de concentração média longitudinal em função do tempo quando a densidade aumenta durante a reação para diferentes valores de D considerando as frentes descendentes de A variando de $t = 0$ a $t = 5600$. No topo dos mapas, apresenta-se as matrizes de concentração de A no tempo $t = 5000$	90
3.16	Média temporal do espectro de potência para (a) a frente ascendente e para (b) a frente descendente do reagente A quando $R_a < R_b$	91
3.17	Média temporal da entropia espectral da frente ascendente (curva vermelha) e da frente descendente (curva azul) do reagente A	92
3.18	Cálculo da função de autocorrelação da (a) frente ascendente e da (b) frente descendente do reagente A quando $R_a < R_b$	92
3.19	Comparação do cálculo da entropia espectral para os três casos estudados considerando (a) as frentes ascendentes e (b) as frentes descendentes.	93
4.1	Exemplo de um dispositivo de injeção de ferro-fluído em uma fenda revestida com material poroso. Exemplos de porosidade das paredes internas da fenda pode ser visto no detalhe da Figura.	97

4.2	Exemplo de sistema com tamanho 32768×512 (grid 16384×256) onde atuam três elementos (A-B-A) considerando $R_A = R_B = 0$. É possível observar no (a) mapa espaço-temporal que de forma imprevisível, existe o surgimento e desaparecimento de <i>fingers</i> . (b) O cálculo da função de autocorrelação espacial desse sistema mostra característica de periodicidade, onde pode-se dizer que existe a predominância de dois períodos principais. (c) O gráfico de primeiro retorno indica um possível atrator.	98
B.1	Evolução temporal dos padrões da equação de KPZ onde $\lambda = 3$ e $\rho = 1$ sendo a) $\nu = 5$, b) $\nu = 10$, c) $\nu = 50$ e d) $\nu = 100$ para $t = 1500, 3000, 4500, 6000, 7500, 9000$ e 10500	114
B.2	Cálculo do expoente de crescimento para a equação de KPZ onde $\lambda = 3$, $\rho = 1$ e $\nu = 10$	116
B.3	a) Cálculo do Coeficiente Gradiente Assimétrico, b) Razão de aspecto assimétrica e b) Espectro de potência da razão de aspecto assimétrica para a equação de KPZ. Os valores médios de G_A para esses casos são: $1,98117 \pm 0,00307$, $1,98113 \pm 0,00305$, $1,98112 \pm 0,003028$	117
B.4	(a) Cálculo do espectro de potência médio no tempo para a equação de KPZ. (b) Cálculo da entropia espectral para a equação de KPZ onde ν varia entre 1 e 50. (c) Média temporal da autocorrelação espacial para a equação de KPZ.	118
C.1	Curvas de dispersão para DF onde percebe-se que o maior valor da constante de crescimento acontece para $t = 0$	120
C.2	Máximo valor da constante de crescimento para diferentes valores de D	120
C.3	Máximo valor da constante de crescimento para diferentes valores de R_a considerando (a) as frentes ascendentes e (b) as frentes descendentes.	121
C.4	(a) Curvas de dispersão para $D = 0, 15$ e diferentes valores de R_a para as frentes ascendentes. (b) Máximo valor da constante de crescimento para diferentes valores de D considerado as frentes descendentes.	121

1 INTRODUÇÃO

1.1 Fenômeno de *Fingering*

Na teoria de crescimento de superfícies, a caracterização do crescimento direcional tem sido de especial interesse para a teoria de formação de padrões em sistemas físicos, químicos e biológicos (BARABÁSI; STANLEY, 1995; WESFREID et al., 1984), especialmente a caracterização de padrões relacionados ao processo de deslocamento de uma interface entre dois fluidos de mobilidades diferentes. Em geral, a partir do estudo do deslocamento da interface, é possível caracterizar o aparecimento de instabilidades hidrodinâmicas no processo. Um exemplo típico desse tipo de instabilidade é o fenômeno conhecido como *fingering*¹. Trata-se de uma instabilidade localizada na interface entre dois fluidos, que ocorre quando um fluido com mobilidade menor desloca-se através de outro de mobilidade maior (veja exemplo na Figura 1.1).

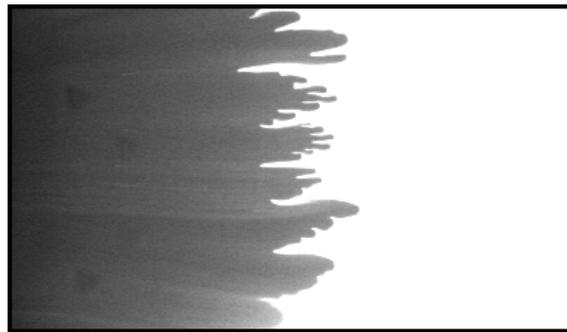


Figura 1.1 - Fenômeno de *fingering* entre dois fluidos miscíveis. O fluido mais escuro é mais viscoso que o fluido mais claro.

Fonte: Imagem cedida por Renaud Maes (NLPC/ULB).

Esse tipo de instabilidade acontece tanto em sistemas miscíveis quanto em sistemas imiscíveis (HOMSY, 1987). No caso de fluidos imiscíveis, um parâmetro competitivo de estabilização é a tensão superficial, que tende a favorecer a formação de uma interface plana. Para fluidos miscíveis, esse processo de estabilização acontece devido a difusão que tende a diminuir o gradiente de mobilidade (DE WIT, 2007). O estudo dessas instabilidades e sua dinâmica espaço-temporal têm aplicação em diversas

¹Na dificuldade para uma tradução precisa para o termo *Fingering*, optou-se em manter o termo em inglês, que significa uma estrutura em formato de dedos.

áreas, como por exemplo, a engenharia do petróleo (HOMSY, 1987), os fenômenos de combustão (ZIK et al., 1998), a deposição eletroquímica (BRUYN, 1995; ELEZGARAY et al., 2000), a cromatografia (NORTON; FERNANDEZ, 1996) e sistemas reativo-difusivos (DE WIT; HOMSY, 1999; ECKERT; GRAHN, 1999; NAGATSU et al., 2008; ORTOLEVA, 1993; NAGATSU et al., 2007).

1.2 *Fingering* de Viscosidade e *Fingering* de Densidade

A diferença de mobilidade que proporciona o aparecimento de instabilidades pode originar-se devido a diferenças de viscosidade e/ou de densidade entre os fluidos envolvidos. A evolução de instabilidades, que ocorrem do deslocamento de um fluido em um meio poroso², considerando as diferenças de viscosidade é denominada *fingering* de viscosidade (VF³) ou instabilidade de Sauffman-Taylor. Basicamente, este fenômeno ocorre quando o fluido menos viscoso tende a penetrar através do fluido ou material mais viscoso. Os padrões aparecem devido a diferença de viscosidade entre os elementos envolvidos e são influenciados pela difusividade resultante da mistura entre os fluidos⁴.

No caso da instabilidade hidrodinâmica conhecida como *fingering* de densidade (DF⁵), um tipo de instabilidade de Rayleigh-Taylor, esta ocorre devido as variações de densidade entre os elementos envolvidos no sistema⁶. A interface entre os dois fluidos deforma-se em *fingers* quando pelo menos um dos fluidos é submetido a uma aceleração na direção oposta ao gradiente de densidade (CHANDRASEKHAR, 1961).

A evolução da interface em forma de *fingers* foi primeiramente estudada por Hill (1952) no contexto de um processo de regeneração. Os experimentos feitos por ele consideraram o deslocamento de líquidos com açúcar por colunas de meios granulares. Qualitativamente, ele explicou as instabilidades resultantes dos experimentos pela diferença de pressão de uma pequena perturbação na interface (HILL, 1952). Essa instabilidade VF ficou conhecida como instabilidade de Sauffman-Taylor

²Meio poroso é todo meio que apresenta poros que podem estar interconectados ou não. Neste trabalho, meio poroso pode ser um meio granular, um fluido ou um cristal.

³Nesse trabalho usa-se a sigla VF referente ao nome em inglês da instabilidade: *Viscous Fingering*.

⁴Veja Homsy (1987) para uma revisão sobre VF.

⁵Nesse trabalho usa-se a sigla DF referente ao nome em inglês da instabilidade: *Density Fingering*.

⁶Veja Sharp (1984) para uma revisão sobre DF.

quando em 1958, Sauffman e Taylor discutiram a Análise de Estabilidade Linear⁷ de um deslocamento unidimensional (SAUFFMAN; TAYLOR, 1958). Curiosamente, em suas discussões, os autores mencionaram que a análise feita por eles estava baseada na análise feita por um desconhecido, “Dr. Chouke”, considerando um termo de tensão superficial. Seis meses após esse resultado ser publicado, o artigo de Chouke et al. (1959) contendo essencialmente o mesmo tipo de análise de estabilidade linear apareceu na literatura. Segundo Homsy (1987), os créditos sobre a análise de estabilidade linear desse fenômeno não foram atribuídos a Chouke provavelmente devido aos atrasos que envolveram a publicação de seus estudos.

A instabilidade resultante entre fluidos onde o mais denso está acima de outro menos denso é conhecida como instabilidade de Rayleigh-Taylor em homenagem a Lord Rayleigh que primeiro descreveu esse fenômeno matematicamente em 1883 (RAYLEIGH, 1883). Em 1950, Sir G. Taylor demonstrou que a instabilidade pode também ocorrer em fluidos submetidos a uma aceleração (TAYLOR, 1950). O primeiro experimento para validar a teoria de Rayleigh e Taylor foi realizado por Lewis em 1950 (LEWIS, 1950).

Com relação a fluidos miscíveis, a primeira observação experimental de DF foi feita por Wooding (1969). Ele realizou experimentos entre fluidos miscíveis com viscosidade constante e analisou principalmente o regime não-linear da evolução das instabilidades (WOODING, 1969). Ele mostrou que a difusão desempenha o mesmo papel que a tensão superficial desempenha para fluidos imiscíveis: a difusão fixa a escala de comprimento inicial do padrão. Similarmente, Fernandez et al. (2002) analisaram o mesmo sistema observando agora o regime linear das instabilidades. Os autores mostraram que, para um número de Rayleigh⁸ (R_a) pequeno, o comprimento de onda é inversamente proporcional a R_a , enquanto que para um R_a alto, a instabilidade entre as placas de Hele-Shaw⁹ (d) apresenta um comprimento de onda cinco vezes o tamanho de d (FERNANDEZ et al., 2002).

Essas duas instabilidades (VF e DF) fornecem padrões e características dinâmicas semelhantes, tais como: aumento do comprimento do *finger*, blindagem aos elementos vizinhos, coalescência, divisão em outros *fingers*, etc. Mas a evolução espaço-temporal desses padrões pode se tornar mais complexa quando o sistema é sub-

⁷Veja Apêndice C para uma breve introdução sobre a Análise de Estabilidade Linear.

⁸Em Mecânica dos Fluidos, o número de Rayleigh para um fluido é um número adimensional associado à convecção livre.

⁹A célula de Hele-Shaw será descrita na Seção 1.1.2.

metido a adição de uma reação química. Neste caso, os padrões são resultantes de um alto acoplamento não-linear entre reações químicas e os processos de transporte como difusão e convecção.

Um dos primeiros trabalhos, onde a adição de reações químicas influenciou nos padrões de DF, foi realizado por [Ortoleva \(1993\)](#). Neste trabalho, o experimento é feito com um fluido que reage com um meio poroso sólido produzindo, através de suas propriedades químicas, um aumento na porosidade do meio ([ORTOLEVA, 1993](#)). Esse acoplamento entre a porosidade e a permeabilidade do fluido resultou em um aumento da mobilidade do fluido naquelas regiões.

No caso de VF, experimentos com sistemas reativos tem mostrado que esses padrões mudam quando a viscosidade do fluido mais viscoso varia devido as reações químicas instantâneas, que alteram a concentração das espécies químicas ([NAGATSU et al., 2007](#)). No caso da instabilidade DF, estudos experimentais e teóricos mostram que as propriedades de *fingering* são fortemente afetadas pelo acoplamento entre as reações químicas e a força ascensional¹⁰. Um exemplo de DF na ausência e na presença de reações químicas é mostrado na Figura 1.2a e Figura 1.2b, respectivamente.

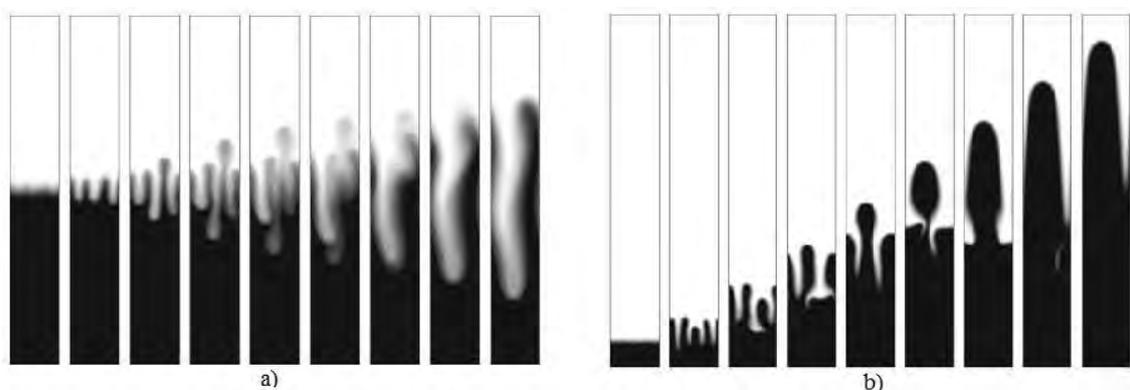


Figura 1.2 - *Fingering* de densidade na ausência (a) e na presença (b) de reações químicas.

Fonte: [De Wit \(2004\)](#).

Um outro tipo de instabilidade dinâmica que pode aparecer quando existe reação

¹⁰A força ascensional (ou empuxo) é aquela diretamente relaciona ao Princípio de Arquimedes que diz: “Todo corpo mergulhado num fluido em repouso sofre, por parte do fluido, uma força vertical para cima, cuja intensidade é igual ao peso do fluido deslocado pelo corpo”.

química no crescimento da interface é a instabilidade difusiva (HORVÁTH et al., 1993; MALEVANETS et al., 1995; MERKIN; KISS, 2005; D'HERNONCOURT et al., 2007). Essa instabilidade deforma uma interface plana em uma “modulação celular”. Considerando a interface formada por um produto autocatalítico de coeficiente de difusão maior que a de um reagente, a tendência da interface é tornar-se planar. Ao contrário, se o coeficiente de difusão maior é do reagente, a interface perde estabilidade sob a influência da difusão do reagente que é maior. Essa instabilidade, experimentalmente, tem uma escala de tempo para o início dos padrões difusivos em torno de horas, sendo a deformação celular com comprimento de onda da ordem de centímetros, ao contrário da instabilidade gerada pelo acoplamento da instabilidade de Rayleigh-Taylor e a força ascensional. No caso dessa última, a instabilidade apresenta uma escala de tempo para início dos padrões da ordem de segundos sendo seu comprimento de onda da ordem de milímetros.

1.3 A célula de Hele-Shaw e a Lei de Darcy

Um dos sistemas mais utilizados para simulação e estudo das instabilidades hidrodinâmicas, oriundas do fluxo de fluídos em meios porosos, é a célula de Hele-Shaw. Frequentemente utilizada como um modelo bidimensional de um meio poroso, a célula de Hele-Shaw foi introduzida pelo engenheiro naval Henry Selby Hele-Shaw, em 1898, para modelar o comportamento de líquidos na presença de obstáculos. Uma representação de uma célula de Hele-Shaw pode ser vista na Figura 1.3. Esta célula consiste de duas placas paralelas, de tamanho $L_x \times L_y$, separadas por uma pequena distância (d). Essas placas podem ser transparentes ou não. Geralmente, pelo menos uma das placas é transparente para que se possa observar os padrões estruturais que podem ocorrer entre os materiais ou os fluídos envolvidos no sistema em estudo. Esses padrões podem ser gerados por processos biológicos, químicos ou físicos e são causados pelo deslocamento dos fluídos e/ou materiais que são adicionados na região entre as placas.

Para estudar o fluxo de fluídos em meios porosos, Henry Darcy em 1863 elaborou a seguinte equação, que ficou conhecida como Lei de Darcy (DARCY, 1856):

$$\nabla p = -\frac{\mu}{k} \underline{u} + \rho \underline{g} \quad (1.1)$$

onde \underline{u} é a velocidade do fluido e ∇p é o gradiente de pressão para uma dada pressão hidrostática $\rho \underline{g}$. A mobilidade do fluido é dada pela razão entre a viscosidade

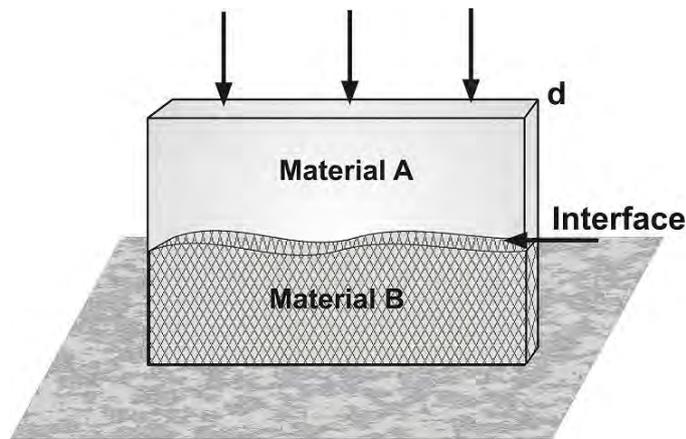


Figura 1.3 - Representação de uma célula básica de Hele-Shaw usada para investigação de fenômenos de interação na interface entre os materiais (fluido, grão, gás, etc.).

do fluido (μ) e a permeabilidade do meio poroso (k). A validade da Lei de Darcy para a modelagem dessas instabilidades depende, para fluidos miscíveis, da distância entre as placas (HOMSY, 1987; RUYER-QUIL, 2001). Neste trabalho, assume-se que a distância d entre as placas é pequena o suficiente, $d \ll L_{x,y}$, onde um fluido incompressível pode ser descrito pela Lei de Darcy¹¹. Uma representação esquemática do fenômeno *fingering* pode ser vista na Figura 1.4.

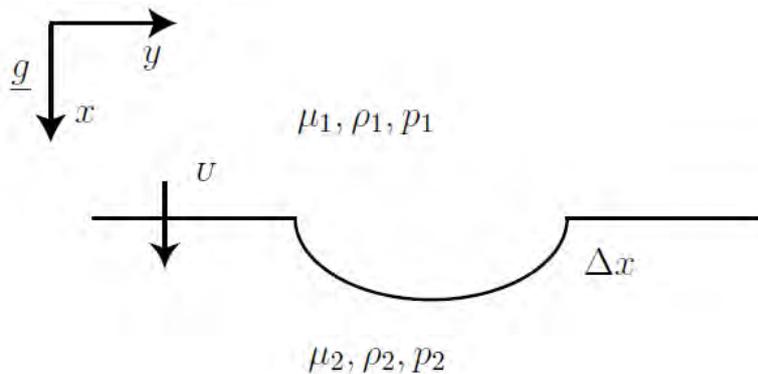


Figura 1.4 - Representação esquemática da deformação de uma interface pelo mecanismo de *fingering*.

Fonte: D'Hernoncourt (2007).

¹¹Maiores detalhes podem ser vistos em De Wit (2007).

A interface torna-se instável se uma pequena perturbação aplicada a ela cresce. Isto ocorre se a pressão dirigida ao longo da perturbação Δx é positiva, isto é, se (HOMSY, 1987)

$$p_1 - p_2 = - \left(\frac{\mu_1 - \mu_2}{K} \right) U \Delta x + g(\rho_1 - \rho_2) \Delta x > 0 \quad (1.2)$$

onde os índices 1 e 2 referem-se ao fluido que está se deslocando e ao fluido deslocado, respectivamente. Basicamente, se os fluidos tem a mesma viscosidade, isto é $\mu_1 = \mu_2$, a instabilidade DF ocorrerá quando $\rho_1 > \rho_2$. Para o caso da instabilidade *fingering* de viscosidade, está ocorrerá se $\mu_1 < \mu_2$.

Considerando a simulação de *fingering* baseada na célula de Hele-Shaw e a Lei de Darcy, surge a necessidade de analisar os padrões de VF e DF tanto para validar os modelos como para compreender de forma detalhada o fenômeno de *fingering*.

1.4 Motivação e Objetivo Geral

Geralmente, a análise dos padrões resultantes de experimentos e/ou de simulações é feita visualmente e com medidas quantitativas clássicas, tais como: comprimento de mistura (L) e número de onda médio (K). A primeira medida (L) calcula o tamanho da região de *fingering*, definida como a distância entre a ponta e a base dos *fingers* (ZIMMERMAN; HOMSY, 1991). A segunda medida (K), o cálculo do número de onda médio, mostra o crescimento dos modos de Fourier de um perfil de concentração do sistema (ZIMMERMAN; HOMSY, 1991; D'HERNONCOURT, 2007). Dessa forma, essa medida permite observar o número de *fingers*, e conseqüentemente, quando existe coalescência entre eles. Entretanto, essas medidas não trazem informações precisas quanto a dinâmica dos padrões no regime não linear das instabilidades. Mas apenas indicam o tamanho da região de *fingering* e a quantidade de *fingers*.

De um ponto de vista geral, esse trabalho dedica-se a caracterizar computacionalmente a evolução dos padrões espaço-temporais de sistemas miscíveis submetidos a reação química ou não. Para isso, uma análise computacional aplicada a um sistema simples, que permite abordar características específicas dos sistemas estudados, é apresentada.

O modelo utilizado nesse trabalho, baseado na Lei de Darcy, é capaz de simular as frentes de propagação resultantes do acoplamento entre as reações autocatalíticas e difusão (TAN; HOMSY, 1986; D'HERNONCOURT et al., 2007). Alterando parâmetros físicos do modelo, a interface resultante entre os dois elementos miscíveis, pode

apresentar DF ou VF. Essas instabilidades, que causam uma desestabilização hidrodinâmica no sistema, são estudadas utilizando as seguintes medidas¹²: comprimento de mistura, número de onda médio e coeficiente de assimetria gradiente para comparação estrutural entre DF e VF; e espectro de potência, entropia espectral e função de autocorrelação espacial para analisar a complexidade estrutural dinâmica das interfaces de um sistema.

1.5 Estrutura do Trabalho

Considerando o objetivo geral desse trabalho, essa tese está dividida em quatro capítulos. O Capítulo 2 contém a descrição do sistema onde atuam dois elementos (um reagente e um produto). Nesta parte do trabalho, o objetivo principal é analisar comparativamente os padrões de DF e VF no regime não-linear usando a Análise de Padrões Gradientes (GPA¹³). A GPA é aplicada nas simulações das dinâmicas de DF e VF calculando em particular o coeficiente de assimetria gradiente para caracterização das assimetrias bilaterais tipicamente observadas nos perfis de concentração média. Dessa forma, mostra-se que a GPA pode fornecer uma medida complementar ao estudo da dinâmica de *fingering* além dos métodos clássicos de caracterização, como comprimento de mistura e o número de onda médio.

A partir desse estudo comparativo, o próximo objetivo é analisar o comportamento das instabilidades quando submetidas a variação da aceleração da gravidade. A GPA é aplicada em simulações de DF, que apresentam padrões diretamente relacionados às diferentes variações do valor da constante gravitacional. Em outras palavras, a caracterização dos padrões ocorrerá considerando o sistema imerso em diferentes valores de aceleração de gravidade com valores típicos para os planetas do sistema solar.

Devido a grande variação de padrões que podem surgir quando um sistema apresenta a adição de reação química, o último objetivo desse trabalho é identificar e quantificar o início da transição para uma dinâmica complexa de um sistema reativo-difusivo-advectivo. O Capítulo 3 apresenta um sistema onde atuam três elementos (dois reagentes e um produto) considerando uma reação autocatalítica do tipo $A + 2B \rightarrow 3B$. Esse sistema desenvolve diferentes dinâmicas em suas duas interfaces

¹²A implementação dessas medidas foram validadas a partir de padrões canônicos de crescimento de interfaces. Esses resultados são apresentados no Apêndice B.

¹³Nesse trabalho usa-se a sigla em inglês que corresponde ao nome internacionalmente conhecido da técnica: *Gradient Pattern Analysis*, que será descrita no mesmo Capítulo.

quando a densidade varia durante a reação. Além disso, esse estudo será comparado ao caos espaço-temporal observado na dinâmica da instabilidade puramente difusiva, que esse sistema pode desenvolver sob certas condições (MALEVANETS *et al.*, 1995). Ferramentas da análise espectral são utilizadas para verificar quando ocorre a transição para uma dinâmica complexa tentando estabelecer o grau de complexidade dos regimes não-lineares.

O Capítulo 4 apresenta a conclusão e perspectivas de trabalhos futuros.

2 SISTEMA DIFUSIVO-ADVECTIVO

Como já descrito anteriormente, as instabilidades *fingering* de viscosidade e *fingering* de densidade podem apresentar padrões semelhantes no regime linear (veja Figura 2.1). Uma comparação quantitativa de tais fenômenos pode ser feita através da Análise de Estabilidade Linear (AEL) (FERNANDEZ et al., 2002; TAN; HOMSY, 1986; MANICKAM; HOMSY, 1995) e/ou a partir do estudo de simulações numéricas (TAN; HOMSY, 1988; MANICKAM; HOMSY, 1995; FERNANDEZ et al., 2002). No regime linear, Manickam e Homsy (1995) analisaram os dois tipos de instabilidade comparativamente e mostraram que as curvas de dispersão (a taxa de crescimento de perturbações na interface em função do seu número de onda) para DF e VF podem ser idênticas para um conjunto específico de valores de parâmetros (MANICKAM; HOMSY, 1995). Além disso, os autores discutem as condições para que um modelo de DF (vertical) dirigido por diferenças de flutuação seja análogo a um modelo de VF (horizontal), induzido por um deslocamento de um fluido viscoso por um menos viscoso com velocidade constante.

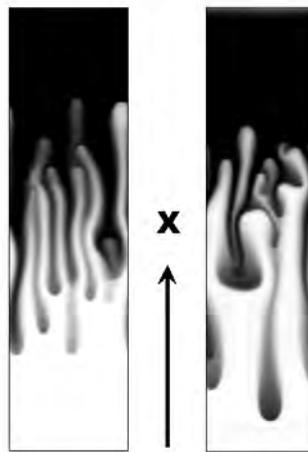


Figura 2.1 - Exemplos de padrões de VF (quadro da esquerda) e de DF (quadro da direita) no regime não-linear obtidos de simulações numéricas onde $R = R_a = 3$ e $t = 2000$. Note que, o padrão de VF (originalmente na horizontal) é posto na vertical propositadamente para ser comparado com o padrão de DF.

As medidas quantitativas clássicas dessas duas instabilidades apresentam resultados muito semelhantes para DF e VF (como é visto nas próximas seções), mas não detalham as diferenças entre esses dois fenômenos. Além disso, a dinâmica de DF e

VF tem equações diferentes de evolução e formação dos padrões e por isso espera-se que algumas diferenças possam ser encontradas.

Neste contexto, o objetivo dessa parte do trabalho é analisar comparativamente os padrões de DF e VF no regime não-linear aplicando a Análise de Padrões Gradientes (GPA). A GPA é aplicada nas simulações das dinâmicas de DF e VF, calculando em particular o coeficiente de assimetria gradiente que fornece a medida de assimetria bilateral dos perfis de concentração média. Dessa forma, a GPA fornece uma medida complementar ao estudo da dinâmica de *fingering* além das caracterizações clássicas como comprimento de mistura e o número de onda médio (DE WIT, 2004).

Neste capítulo, apresenta-se o estudo dos padrões do tipo *fingering* utilizando as técnicas de caracterização quanto a assimetria do sistema comparados com os resultados obtidos de medidas clássicas de caracterização. As próximas sessões descrevem os modelos para gerar a dinâmica não-linear de DF e VF e um detalhado estudo da aplicação da GPA como nova medida de caracterização do fenômeno *fingering*. Além disso, neste capítulo apresenta-se um estudo inédito sobre os padrões de DF quando o sistema é submetido a variação da constante gravitacional.

2.1 Modelo do Sistema

O modelo do sistema é um meio poroso bidimensional ou uma célula de Hele-Shaw de comprimento L_x e largura L_y , onde duas soluções miscíveis são colocadas em contato quando $t = 0$. A densidade ou viscosidade das soluções supostamente dependem da concentração de um dado soluto c . A condição inicial pode ser obtida colocando em contato, quando $t = 0$, uma solução contendo c de concentração $c = c_1 = 1$ com a mesma solução onde $c = c_0 = 0$ (veja Figura 2.2).

O sistema pode ser descrito pelas equações de Darcy bidimensionais (Equações 2.1-2.2) para um campo de velocidade $\underline{u} = (u, v)$ acopladas a uma equação de convecção-difusão (Equação 2.3) para a concentração das espécies c (TAN; HOMSY, 1986; HOMSY, 1987; MANICKAM; HOMSY, 1995):

$$\underline{\nabla} \cdot \underline{u} = 0 \quad (2.1)$$

$$\underline{\nabla} p = -\frac{\mu}{\kappa} \underline{u} + \rho \underline{g} \quad (2.2)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \underline{u} \cdot \underline{\nabla} c = D \nabla^2 c \quad (2.3)$$

onde a permeabilidade κ e o coeficiente de difusão D são constantes, enquanto p representa a pressão, μ representa a viscosidade e ρ representa a densidade.

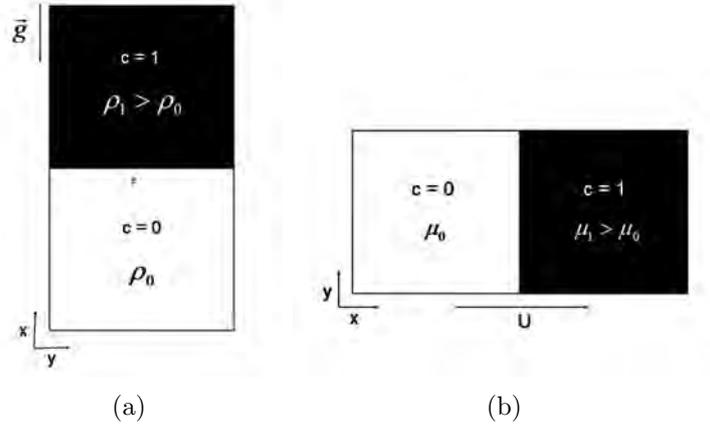


Figura 2.2 - (a) Esboço do modelo de um sistema usado para *fingering* de densidade (b) e *fingering* de viscosidade.

2.1.1 *Fingering* de Densidade

Fingering devido a instabilidade de Rayleigh-Taylor pode ser analisado assumindo a viscosidade μ constante e a densidade $\rho(c)$ variando de acordo com a concentração local do soluto c , onde neste caso, $\rho(c) = \rho_0 + (\rho_1 - \rho_0)\frac{c}{c_1}$ tal que $\rho_1 = \rho(c = c_1)$ e $\rho_0 = \rho(c = 0)$. O campo gravitacional \underline{g} é orientado ao longo de x , como mostra a Figura 2.2(a) onde não existe injeção no sistema. Em $t = 0$, a solução de c de concentração $c = 1$ é colocado sobre o soluto de concentração $c = 0$ (ZIMMERMAN; HOMSY, 1991).

Usando $U = \frac{\delta\rho g\kappa}{\nu}$ como velocidade característica da força ascensional (ou empuxo) é possível adimensionalizar as equações governantes usando $L_h = \frac{D}{U}$ como escala de comprimento e $\tau = \frac{D}{U^2}$ como escala temporal. A pressão, densidade e concentração são escalonadas por $\frac{\mu D}{\kappa}$, ρ_0 e c_1 , respectivamente, e a viscosidade cinemática é dada por $\nu = \frac{\mu}{\rho_0}$. As equações de evolução adimensionais para DF tornam-se então:

$$\nabla \cdot \underline{u} = 0, \quad (2.4)$$

$$\nabla p = -\underline{u} + cR_a \underline{e}_x, \quad (2.5)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \underline{u} \cdot \nabla c = \nabla^2 c \quad (2.6)$$

onde \underline{e}_x é o vetor unitário ao longo de x e p contém agora a pressão hidrostática. O número de Rayleigh é definido como:

$$R_a = \frac{\Delta\rho g \kappa L_h}{\nu D}. \quad (2.7)$$

O comprimento do domínio adimensional do sistema é dado por $L'_y = L_y/L_h$ e $L'_x = L_x/L_h$.

Tomando o rotacional da Equação 2.5 e introduzindo a função “stream” $\psi(x, y)$ tal que $u = \partial\psi/\partial y$ e $v = -\partial\psi/\partial x$, obtêm-se as equações adimensionais finais que descrevem a formação de DF:

$$\nabla^2\psi = R_a c_y, \quad (2.8)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + c_x \psi_y - c_y \psi_x = \nabla^2 c. \quad (2.9)$$

2.1.2 *Fingering* de Viscosidade

A instabilidade VF ocorre quando um fluido menos viscoso de viscosidade μ_0 desloca um fluido mais viscoso de viscosidade $\mu_1 > \mu_0$ em um meio poroso com uma velocidade contante U . Sendo ρ constante e a viscosidade μ dependente da concentração do soluto, considera-se aqui que $\underline{g} = 0$. Considerando a velocidade de injeção do fluido U como velocidade característica, as escalas de comprimento e temporal são dadas por $L_h = \frac{D}{U}$ e $\tau = \frac{D}{U^2}$, respectivamente. A pressão e a concentração são escalonadas por $\frac{\mu_1 D}{\kappa}$ e c_1 enquanto a viscosidade é escalonada por μ_1 . Dessa forma, as equações adimensionais são:

$$\underline{\nabla} \cdot \underline{u} = 0, \quad (2.10)$$

$$\underline{\nabla} p = -\mu(\underline{u} + \underline{e}_x), \quad (2.11)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \underline{u} \cdot \underline{\nabla} c = \nabla^2 c. \quad (2.12)$$

A viscosidade adimensional muda exponencialmente com a concentração, tal que,

$$R = \frac{d(\ln \mu)}{dc} \quad (2.13)$$

onde R corresponde a razão de log-mobilidade (ESTEVES et al., 2001). A instabilidade VF ocorrerá se $R > 0$. Em termos de função “stream”, as equações adimensionais

finais são dadas por (TAN; HOMSY, 1988):

$$\nabla^2\psi = -R(c_x\psi_x + c_y\psi_y + c_y), \quad (2.14)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + c_x\psi_y - c_y\psi_x = \nabla^2 c. \quad (2.15)$$

Analisando as equações adimensionais finais para DF (Equações 2.8 e 2.9) e para VF (Equações 2.14 e 2.15), nota-se que a diferença entre elas existe no termo de vorticidade $w(x, y) = -\nabla^2\psi$ que conduz a diferentes dinâmicas.

2.1.3 Simulações Numéricas

As equações adimensionais finais são resolvidas numericamente usando o método pseudo-espectral introduzido por Tan e Homsy (1988)¹ para o fenômeno de *fingering* de viscosidade. As condições de contorno são periódicas nas direções x e y , enquanto que a condição inicial é $\psi = 0$ para todo (x, y) . Assume-se a função degrau entre $c = c_1 = 1$ e $c = c_0 = 0$ com ponto intermediário onde $c = 1/2 + Ar$. O parâmetro r é um número aleatório entre 0 e 1, e A é a amplitude do ruído da ordem de 10^{-3} . Como o objetivo dessa parte do trabalho é comparar os perfis de *fingering*, é importante que todas as simulações sejam realizadas com o mesmo ruído e mesmo tamanho de sistema (4096×1024). A discretização espacial usa a razão 4 entre o número de modos espectral e o comprimento e largura adimensionais. A correspondente discretização temporal é $dt = 0,2$.

Quanto a dependência ao refinamento temporal, sabe-se que a dinâmica do fenômeno de *fingering* permanece a mesma independente do tamanho do refinamento. A Figura 2.3 apresenta um exemplo dos resultados quanto ao refinamento temporal. A superposição exata das curvas nas Figuras 2.3(b) e 2.3(c) indica que a dinâmica dos padrões permanece a mesma, tanto para a matriz de concentração quanto para as medidas clássicas de caracterização.

A próxima seção apresenta as medidas para a análise dos resultados e os resultados obtidos. Esses resultados são apresentados comparando DF e VF onde o objetivo é caracterizar a dinâmica de ambas instabilidades no regime não-linear das simulações.

¹Veja Apêndice A para descrição adaptada do método e pseudo-algoritmo.

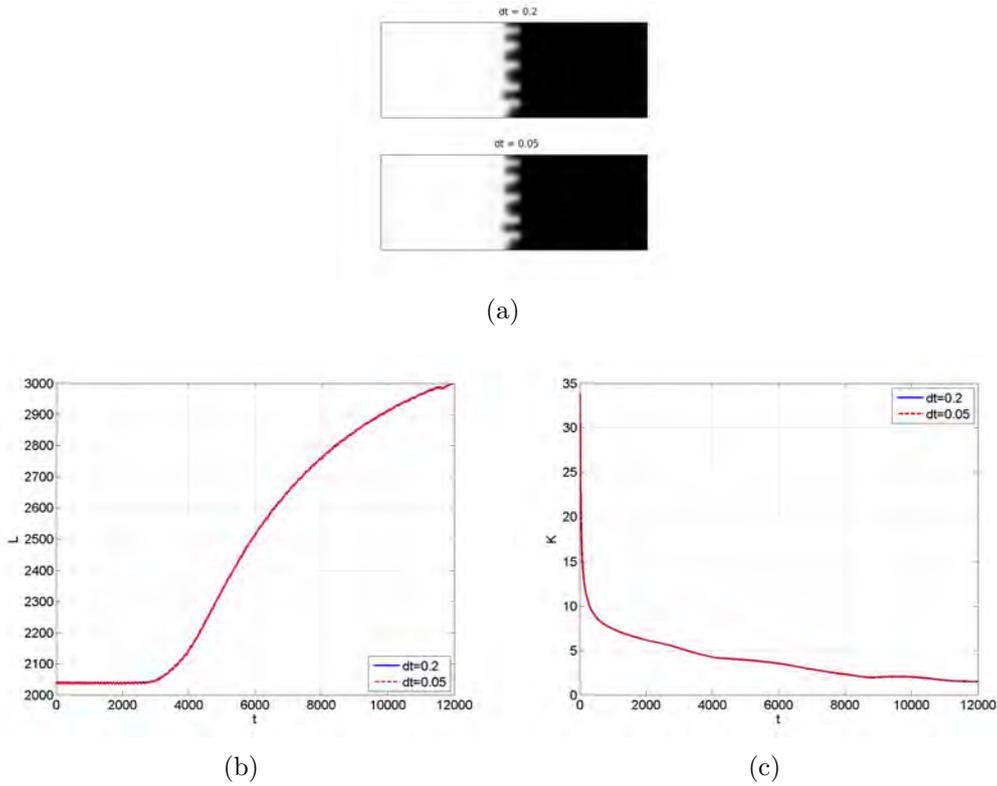


Figura 2.3 - Exemplo da não dependência ao refinamento temporal na simulação de padrões de *fingering* (VF) para $R = 1$: (a) matriz de concentração em $t = 3000$, (b) comprimento de mistura e (c) número de onda médio.

2.2 Sobre os Dados e Medidas para Análise

Os padrões de *fingering* são dados por matrizes de concentração, conforme mostra as Figuras 2.4(a) e 2.5(a). A dinâmica das matrizes de concentração $2D$ podem ser analisadas estudando a sua evolução temporal. Durante essa evolução temporal, as matrizes de concentração podem ser espacialmente analisadas ao longo das direções longitudinal x ou transversal y por perfis de concentração média $1D$. Tais perfis médios são usados neste trabalho para todas as análises a serem aplicadas considerando a obtenção de medidas de caracterização estrutural dos *fingers*.

2.2.1 Perfis de Concentração Média

O perfil de concentração média longitudinal é definido como:

$$\langle c(y, t) \rangle = \frac{1}{L_x} \int_0^{L_x} c(x, y, t) dx. \quad (2.16)$$

Esses perfis mostram a evolução temporal do número de *fingers*, como pode ser visto nas Figuras 2.4(b) e 2.5(b). Para uma interface estável, $\langle c(y, t) \rangle$ permanece constante e igual a média de concentração da célula. Para sistemas instáveis, essa medida permite observar o número de *fingers* e como eles interagem: podem espalhar, proteger seus vizinhos ou coalescer para tornar-se finalmente, em alguns casos, um único *finger* assintótico (DE WIT, 2004; ZIMMERMAN; HOMSY, 1991; HOMSY, 1987). Este perfil também é usado para o cálculo de uma medida clássica de caracterização

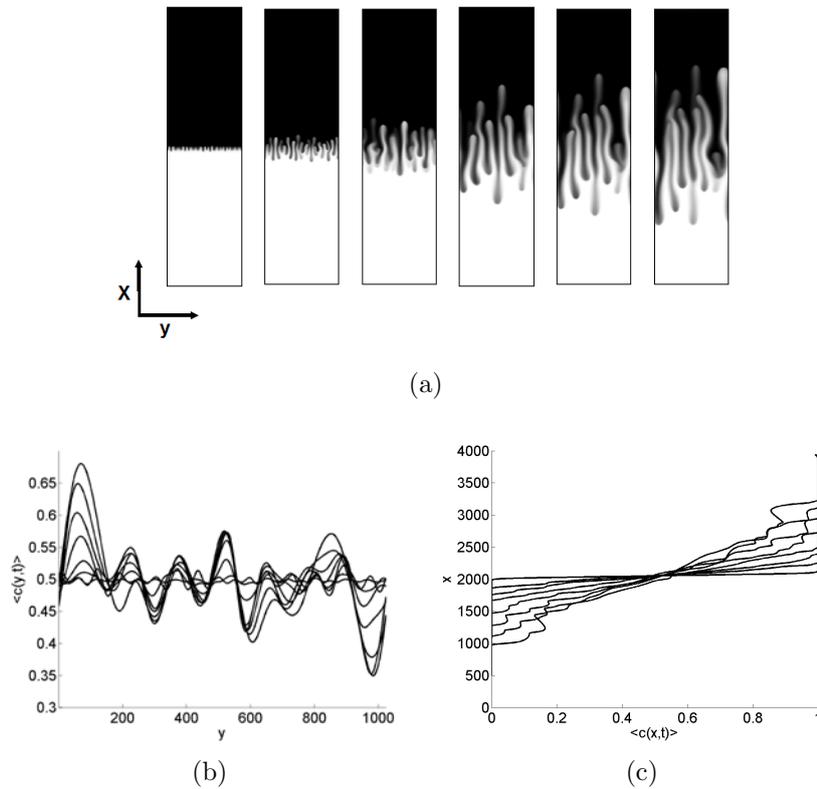


Figura 2.4 - Evolução temporal de (a) *fingering* de densidade (250, 500, 1000, 1500, 1750, 2000) correspondente perfis de concentração média (b) longitudinal and (c) transversal para um sistema onde $R_a = 3$.

de padrões de *fingering*: o número de onda médio.

Equivalentemente, define-se o perfil de concentração média transversal (ZIMMERMAN; HOMSY, 1991):

$$\langle c(x, t) \rangle = \frac{1}{L_y} \int_0^{L_y} c(x, y, t) dy. \quad (2.17)$$

Esse perfil é relacionado as curvas unidimensionais medidas através de detectores colocados ao longo das colunas porosas em experimentos (TCHELEPI *et al.*, 1993). Na ausência de *fingers*, tais perfis unidimensionais mostram a função erro característica da evolução temporal de uma interface entre duas soluções miscíveis quando iniciadas de uma função escada. Na presença de *fingers*, esse perfil apresenta um “salto” característico da presença de variações de concentração através da direção transversa devido aos *fingers*. As Figuras 2.4(c) e 2.5(c) mostram os perfis de concentração média transversal em função do tempo correspondente a dinâmica não-linear dos padrões de DF e VF, respectivamente. O perfil de concentração média trans-

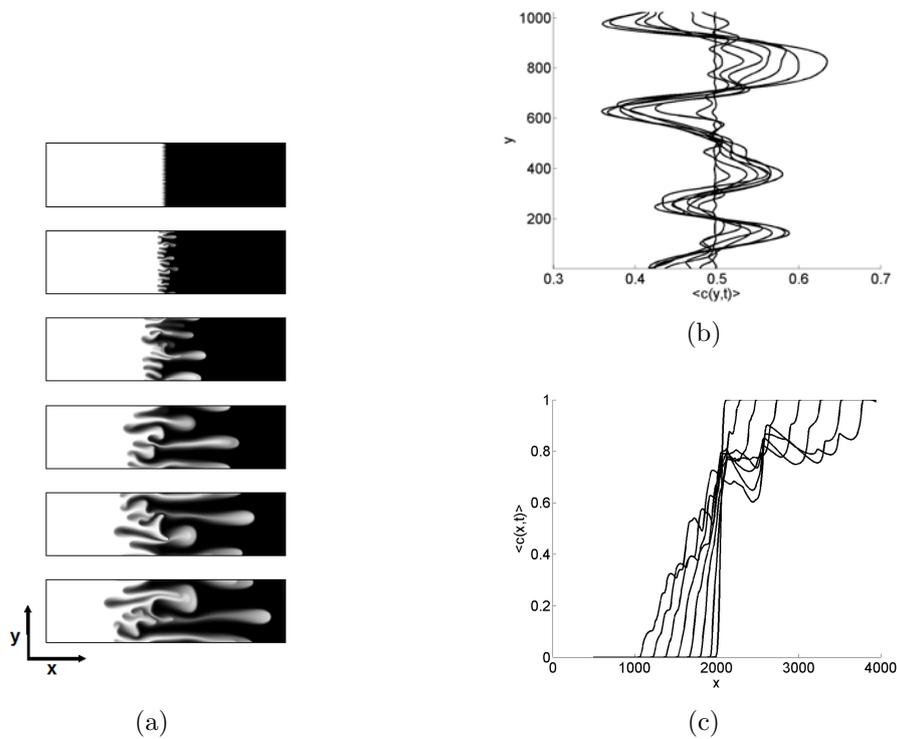


Figura 2.5 - Evolução temporal de (a) *fingering* de viscosidade ($t = 250, 500, 1000, 1500, 1750, 2000$) correspondente perfis de concentração média (b) longitudinal and (c) transversal para um sistema onde $R = 3$.

versal é também usado no cálculo de uma das medidas quantitativas clássicas de caracterização de padrões de *fingering*: o comprimento de mistura.

Em geral, existem pelo menos três propriedades estruturais que podem ser medidas durante a evolução de padrões de *fingering* a partir de seus perfis de concentração

média: (i) o contraste da densidade (ou viscosidade) tangencialmente as instabilidades; (ii) a coalescência não-linear; e (iii) as assimetrias bilaterais da base de estado dos perfis de concentração média resultantes da difusão não-linear: inicialmente, há uma nítida interface entre os fluidos, mas a difusão provoca “saltos” assimétricos que espalham-se. Espera-se que as assimetrias bilaterais aumentem devido a instabilidade entre os *fingers* e oscilações não-lineares do perfil. Atualmente, as medidas estruturais permitem a caracterização das duas primeiras propriedades estruturais descritas acima (através do cálculo do comprimento de mistura e número de onda médio, respectivamente) sendo de interesse para alguns considerar uma medida complementar para caracterizar as assimetrias dos perfis de concentração média. Neste trabalho propõe-se o Coeficiente de Assimetria Gradiente como medida complementar.

Neste trabalho, os dois perfis de concentração média são utilizados para a análise dos sistemas simulados. As medidas utilizadas na análise são descritas na próxima seção.

2.2.2 Medidas Quantitativas Clássicas

Para validar a aplicação da GPA para a caracterização de padrões de *fingering*, os resultados são comparados com os resultados das medidas quantitativas clássicas utilizadas na literatura. Essas medidas são o comprimento de mistura e o número de onda médio.

Os perfis de concentração média transversal são frequentemente utilizados para definir o fim e o início da região de *fingering*. A medida da região de *fingering* é conhecida como comprimento de mistura² e fornece informação da extensão espacial da região de mistura onde os dois fluidos interagem devido aos padrões de *fingering*. O início é escolhido (arbitrariamente) como o local onde, ao longo do eixo x , a frente de propagação apresenta um valor de concentração média $\langle c(x, y) \rangle$ menor que 0,01. Por outro lado o fim dessa região corresponde ao local onde $\langle c(x, y) \rangle$ é maior que 0,99. A Figura 2.6 mostra o resultado do cálculo do comprimento de mistura para os perfis de VF e DF mostrados nas Figuras 2.5 e 2.4.

Neste caso, o comprimento de mistura mostra quando a região de *fingering* para as duas instabilidades (DF e VF) tem mesmo comprimento (até $t \approx 300$). Após

²O termo em inglês para essa medida é *mixing length*.

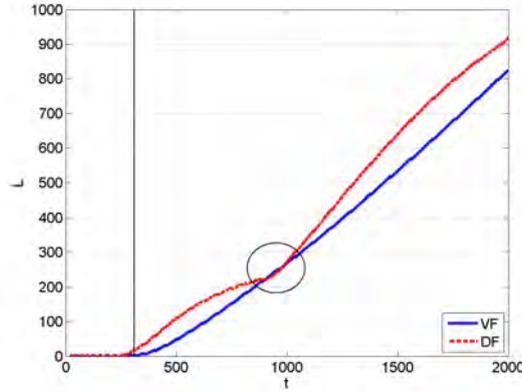


Figura 2.6 - Comprimento de mistura em função do tempo correspondente a dinâmica não-linear das Figuras 2.5(a) e 2.4(a).

esse período, DF apresenta uma região maior de *fingering* coincidindo com VF no período entre $t \approx 850$ e $t \approx 1100$. Após $t \approx 1100$, DF tende a apresentar maior região de mistura do que VF, indicando um comportamento mais dispersivo.

Outra medida quantitativa frequentemente utilizada na análise de padrões de *fingering* é o número de onda médio. O cálculo dessa medida é definido como:

$$\langle k(t) \rangle = \frac{\sum_i k_i P_i}{\sum_i P_i} \quad (2.18)$$

onde k_i são os modos de Fourier da transformada de Fourier dos perfis de concentração média longitudinal, e $P(k)$ sua amplitude no espaço de Fourier³.

Esta medida é utilizada para comparar os resultados das simulações não-lineares com as previsões da Análise de Estabilidade Linear (MERKIN; KISS, 2005; D'HERNONCOURT, 2007). A Figura 2.7 mostra o resultado do cálculo do comprimento de mistura para os perfis de VF e DF mostrados nas Figuras 2.5 e 2.4.

Essa medida mostra que no intervalo entre $t \approx 850$ e $t \approx 1100$ onde, apesar da região de mistura das duas instabilidades serem de tamanho similar, a instabilidade DF apresenta número de onda médio maior que o número de onda médio de VF. Em outras palavras, pode-se dizer que o número médio de *fingers* de DF é maior que o número de *fingers* de VF.

³O comprimento de onda médio é então $\langle \lambda(t) \rangle = 2\pi / \langle k(t) \rangle$ (D'HERNONCOURT, 2007).

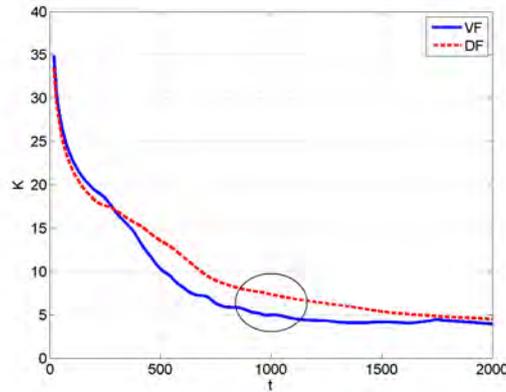


Figura 2.7 - Número de onda médio em função do tempo correspondente a dinâmica não-linear das Figuras 2.5(a) e 2.4(a).

Analisando as duas medidas clássicas de caracterização nota-se que as propriedades analisadas constam apenas da extensão de padrões de *fingering* e número de *fingers*. Conseqüentemente, características como a assimetria bilateral dos perfis $\langle c(x, t) \rangle$ e $\langle c(y, t) \rangle$ do sistema não são analisadas. Neste contexto, o objetivo nesta parte do trabalho é analisar as assimetrias bilaterais através do Coeficiente de Assimetria Gradiente da GPA⁴.

2.2.3 Coeficiente de Assimetria Gradiente

Para calcular o coeficiente de assimetria gradiente (G_A) para um dado padrão de amplitudes $L \times L$, é usado o operador de fragmentação de amplitude assimétrica (conhecido na literatura internacional como *Asymmetric Amplitude Fragmentation (AAF) operator*) (ROSA et al., 1999). Esse operador computacional fornece uma medida da quebra de simetria de uma dada grade gradiente e tem sido usado em diversas caracterizações (ROSA et al., 1999; RAMOS et al., 2000; ASSIREU et al., 2002; ROSA et al., 2003; BARONI et al., 2006; ROSA et al., 2007).

A grade gradiente é obtida da seguinte forma: de uma matriz de amplitudes F (Figura 2.8(a)) calcula-se os gradientes locais (Figura 2.8(d)) através de diferenças centradas entre os pontos vizinhos na direção x , dF/dx (Figura 2.8(b)), e na direção y , dF/dy (Figura 2.8(c)). Essas diferenças são dadas por $\frac{F(i+1)-F(i-1)}{2h}$, sendo h o

⁴Veja Rosa et al. (1999), Rosa et al. (2003), Ramos et al. (2000), Assireu et al. (2002), Rosa et al. (2003), Baroni et al. (2006), Rosa et al. (2007) para maiores detalhes sobre a Análise de Padrões Gradientes e suas aplicações.

espaço entre os pontos e i o índice relativo aos pontos na direção x ou y . Neste trabalho assume-se $h = 1$. No contorno a diferença é dada por $\frac{F(i+1)-F(i)}{h}$, na primeira coluna e na primeira linha, e $\frac{F(i)-F(i-1)}{h}$ na última linha e na última coluna.

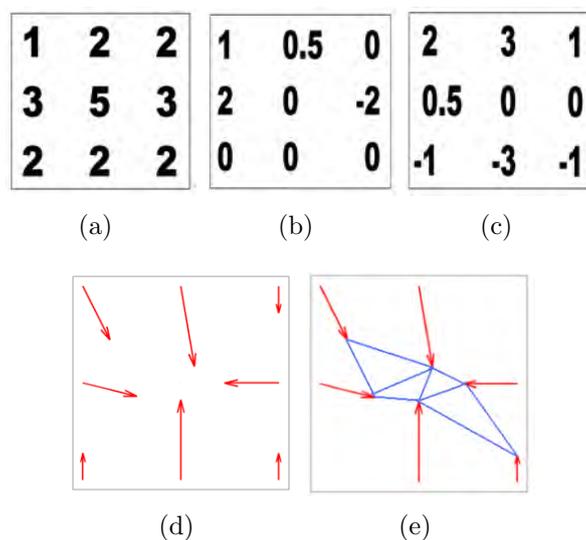


Figura 2.8 - Exemplo da obtenção da grade gradiente a partir de (a) uma matriz de amplitudes: (b) cálculo das diferenças na direção x , (c) cálculo das diferenças na direção y , (d) grade gradiente, e (e) triangulação de Delaunay.

Neste trabalho, o conceito de simetria para uma perfil unidimensional (espacial ou temporal) é definido em [Assireu et al. \(2002\)](#). Este conceito é ilustrado na Figura 2.9. A Figura 2.9(a) mostra um exemplo de padrão de perfil de amplitude totalmente simétrico com relação ao eixo vertical. Este exemplo é composto por 100 pontos que podem ser mapeados na forma de uma matriz quadrada de tamanho 10×10 (a Figura 2.10 mostra o mapeamento dos valores de amplitude de um perfil genérico contendo 1024 pontos). O correspondente padrão gradiente é mostrado na Figura 2.9(d). No caso do perfil mapeado apresentado na Figura 2.9(d), considerando qualquer eixo diagonal na grade gradiente nota-se que para cada vetor local v na grade, existe um vetor correspondente de mesmo módulo e fase oposta, tal que, após uma exclusão de pares de vetores simétricos, a grade gradiente ficaria vazia. Dois exemplos de perfis de amplitude assimétricos e suas correspondentes grades assimétricas são apresentados nas Figuras 2.9(b), 2.9(c), 2.9(e) e 2.9(f), respectivamente.

A medida gradiente global dos vetores assimétricos, chamada de Coeficiente de As-

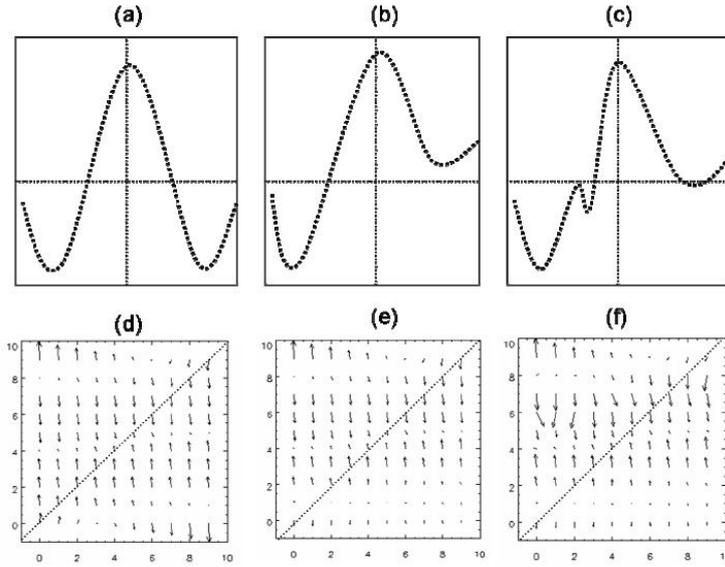


Figura 2.9 - Três exemplos de perfis de amplitude compostos por 100 pontos e suas respectivas grades gradientes 10×10 .

simetria Gradiente, é dada por:

$$G_A = \frac{|N_C - N_V|}{N_V} \quad (2.19)$$

onde N_V é o número total de vetores assimétricos (após a remoção dos vetores simétricos) e N_C é o número de conexões entre todos os vetores (gradientes locais).

A conexão geométrica entre os vetores é gerada pela triangulação de Delaunay tomando arbitrariamente o ponto final de cada vetor assimétrico local como vértice, como mostra a Figura 2.11. Devido a possível mudança nas fases de cada gradiente local (um vetor na grade gradiente), a variação do valor N_C é capaz de detectar flutuações assimétricas locais na grade gradiente (ROSA et al., 1999) e conseqüentemente, no perfil unidimensional original. Dessa forma, as quebras de simetria bilaterais nos perfis são registradas como quebras de simetria, em relação às diagonais na grade gradiente.

No exemplo da Figura 2.8, a respectiva triangulação é apresentada na Figura 2.8(e), onde após a remoção de 2 vetores simétricos (vetores da posição (1, 3) e (3, 1)), tem-se $N_C = 12$ e $N_V = 7$, e conseqüentemente $G_A = 0.7143$.

A Figura 2.12 mostra a sensibilidade da triangulação em detectar o aumento da

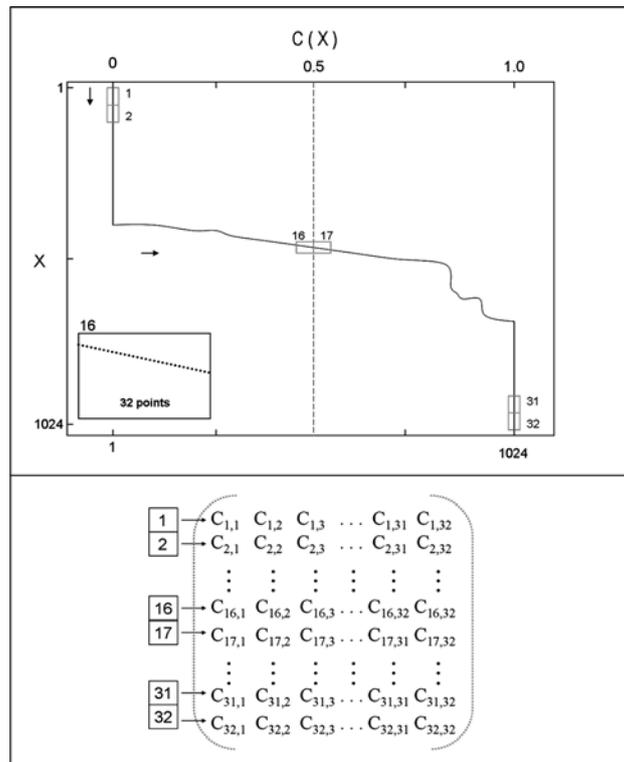


Figura 2.10 - Metodologia de mapeamento de um perfil de concentração média: $\langle c(x, t) \rangle$ ou $\langle c(y, t) \rangle$ consistindo de um vetor de N posições para uma matriz $\sqrt{N} \times \sqrt{N}$. O exemplo dado aqui para $\langle c(x, t) \rangle$ tem 1024 pontos distribuído em uma matriz 32×32 .

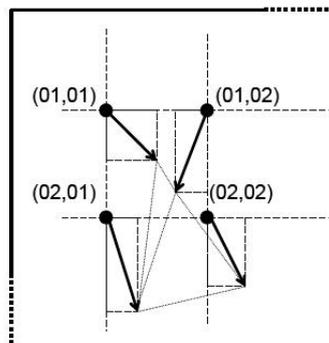


Figura 2.11 - Um exemplo arbitrário da triangulação de Delaunay entre quatro vetores e sua correspondente grade gradiente.

assimetria local na grade gradiente. As Figuras 2.12(a) e 2.12(c) são grades gradientes assimétricas obtidas após remover todos pares simétricos do padrão gradiente mostrados nas Figuras 2.9(a) e 2.9(b) respectivamente. Os respectivos padrões de triangulação são mostrados nas Figuras 2.12(b) e 2.12(d). Os coeficientes gradi-

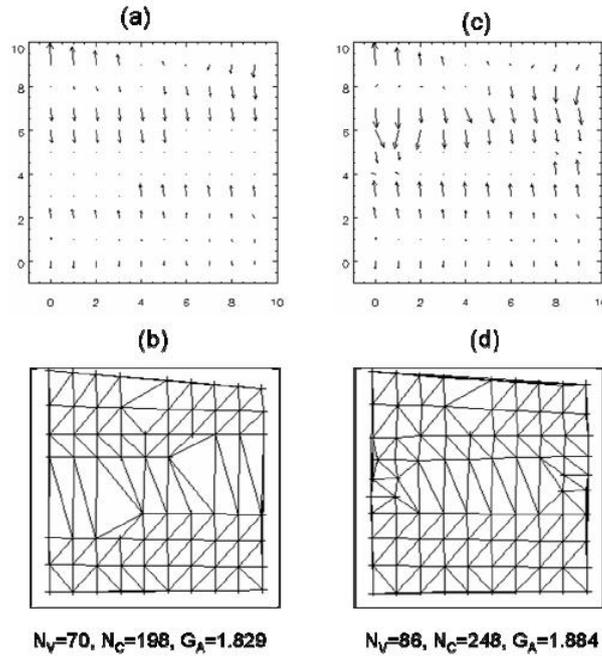


Figura 2.12 - As respectivas grades gradientes assimétricas e padrões de triangulação para os perfis de amplitudes apresentados nas Figuras 2.9(b) e 2.9(c).

ente assimétricos calculados são proporcionais ao nível de assimetria de amplitude original mostrada nos respectivos perfis de amplitude nas Figuras 2.9(b) e 2.9(c). Portanto, tomando como exemplos os perfis apresentados nas Figuras 2.9(b) e 2.9(c), o menos assimétrico (Figura 2.9(b)) apresenta o coeficiente de assimetria gradiente $G_A \approx 1,83$ enquanto o mais assimétrico (Figura 2.9(c)) apresenta $G_A \approx 1,88$.

Diversos cálculos em padrões aleatórios tem mostrado que o coeficiente de assimetria gradiente quantifica o nível de assimetria gradiente apresentando maior precisão e robustez na caracterização de estruturas complexas e irregulares que medidas de comprimento de correlação (ROSA et al., 1999). Quando não existe flutuação assimétrica no padrão gradiente, o número total de vetores assimétricos é zero, e por definição, o valor do coeficiente é nulo, $G_A = 0$, como no caso do perfil mostrado na Figura 2.9(a). Para um padrão gradiente gerado por números aleatórios, o valor do coeficiente de assimetria gradiente é máximo⁵, ou seja, todas as normas e fases

⁵O máximo valor de G_A está diretamente relacionado a Triangulação de Delaunay. Este tipo de triangulação é o dual do Diagrama de Voronoi (ARAUJO, 2009). Por ser dual deste diagrama, a Triangulação de Delaunay obedece a seguinte propriedade: “Para $n > 3$, o número dos vértices do Diagrama de Voronoi de um conjunto de n pontos em um plano é de no máximo $2n - 5$ e o número de arestas é no máximo $3n - 6$ ”. Conseqüentemente, uma grade gradiente com um número

são diferentes entre si numa dada grade gradiente (ROSA et al., 1999; BARONI, 2005). Para um padrão complexo composto de flutuações assimétricas locais, o valor do coeficiente de assimetria gradiente é diferente de zero definindo diferentes classes de padrões de flutuação complexa.

A fórmula para o cálculo do valor do coeficiente assimétrico é baseada no regime assintótico dos valores de G_A observados por Rosa et al. (1999), onde a razão $\frac{|N_C - N_V|}{N_V}$ para uma grade estendida de tamanho igual a $\sqrt{N} \times \sqrt{N}$, com $\sqrt{N} \gg 3$ (e consequentemente, $N_V \gg 9$), tende para 2.

Para analisar a robustez dos resultados obtidos para o cálculo de G_A com relação as mudanças nos padrões para um dado conjunto de parâmetros, a robustez da análise foi testada para quinze simulações variando a semente de geração dos números aleatórios usados na função escada da condição inicial. Esta escolha deve-se ao fato de que no início da instabilidade, o comprimento de onda é fixo por uma competição entre a desestabilização da viscosidade ou diferenças de densidade e estabilização da difusão. Entretanto, o local de cada *finger* é determinado pelo ruído adicionado a condição inicial. Desta forma, as interações não-lineares entre esses *fingers* dependem também do ruído inicial. Assim, para os mesmos valores de parâmetros, o padrão de *fingering* deverá ser diferente para cada variação da semente do ruído na condição inicial (DE WIT et al., 2005).

Nesta análise de robustez, todos os outros parâmetros permanecem constantes sendo $R = R_a = 1$. Desta forma, calcula-se G_A para os 15 diferentes padrões de *fingering* e obtém-se a média e o desvio padrão do cálculo. A Figura 2.13 apresenta esses resultados.

Em ambos os casos dos perfis de concentração média, o valor do desvio padrão apresenta uma variação da ordem de 10^{-2} e 10^{-3} em torno da média que é aproximadamente 1,90 (veja Figura 2.14). De acordo com Rosa et al. (1999), matrizes assimétricas onde $N_V \geq 400$ com tamanho aproximado de 16×16 e 32×32 podem ser comparadas quando o desvio padrão do coeficiente de assimetria gradiente é da ordem de 10^{-2} e 10^{-3} , respectivamente (ROSA et al., 1999). Dessa forma, essa análise mostra que o coeficiente de assimetria gradiente apresenta resultados robustos quando calculado para padrões de *fingering*.

máximo de arestas ($N_C^{max} = 3N_V - 6$), terá $G_A = \frac{2N_V^{max} - 6}{N_V^{max}}$ (BARONI, 2005).

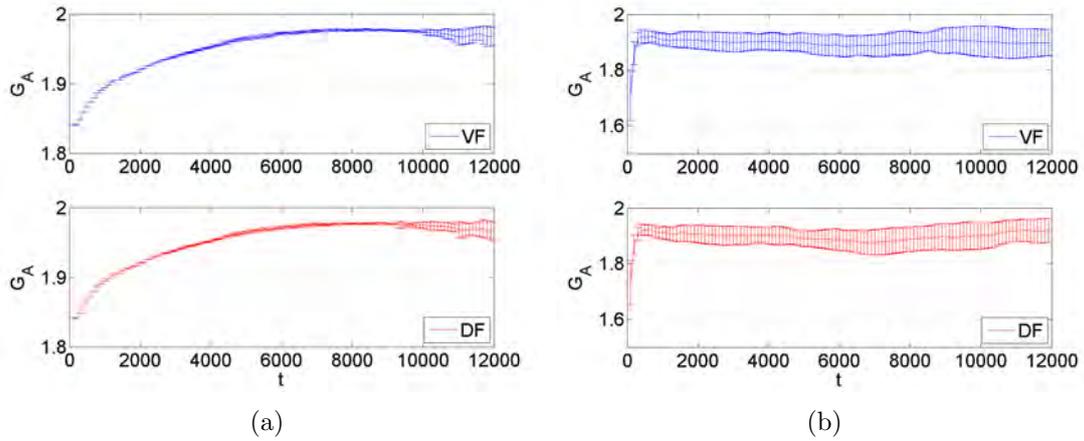


Figura 2.13 - Barra de erro dos valores de G_A para 15 diferentes realizações da aplicação do GPA nos perfis de concentração média (a) transversal e (b) longitudinal.

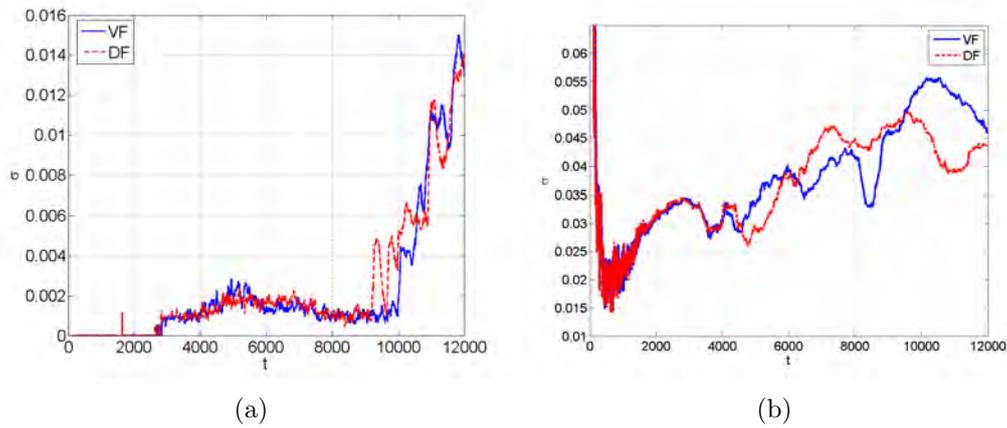


Figura 2.14 - Desvio padrão para aplicação do GPA nos perfis de concentração média (a) transversal e (b) longitudinal.

A partir do cálculo do coeficiente de assimetria gradiente de um determinado sistema, pode-se inferir uma medida de razão de aspecto da estrutura.

2.2.4 Razão de Aspecto de Assimetria

A razão de aspecto de assimetria é proposta para avaliar a influência de aspectos locais com relação ao aspecto global da estrutura. O valor da razão de aspecto assimétrica para um perfil qualquer é encontrada da seguinte forma:

$$\Gamma_A(\ell) = \frac{G_A(L) - \langle G_A(\ell) \rangle}{G_A(L)} \quad (2.20)$$

onde $G_A(L)$ é o valor do coeficiente de assimetria gradiente global da estrutura e $\langle G_A(\ell) \rangle$ é a média do valor do coeficiente de assimetria gradiente local da estrutura. No caso de um sistema genérico, pode-se dizer que a presença de assimetria é invariante quanto a escala quando o valor de Γ_A tender a zero se ℓ tende a L , isto é, $\Gamma_A(\ell) \rightarrow 0$ se $\ell \rightarrow L$.

A próxima sessão apresenta os resultados da análise de padrões de *fingering* utilizando as medidas clássicas de caracterização e cálculo do coeficiente de assimetria gradiente.

2.3 Resultados

Utilizando a Análise de Estabilidade Linear(AEL), [Manickam e Homsy \(1995\)](#) analisaram as instabilidades DF e VF para meios porosos miscíveis nos regimes lineares e não-lineares⁶. Sabe-se que para meios porosos imiscíveis, a equivalência foi encontrada por [Aref e Tryggvason \(1989\)](#). No caso de meios porosos miscíveis, isso não é sempre verdade, e ocorrerá apenas no regime linear das simulações ([MANICKAM; HOMSY, 1995](#)).

Conhecendo os resultados da AEL, para quantificar as diferenças estruturais entre os dois tipos de padrões de *fingering* (VF e DF), três conjuntos de dados foram obtidos. Em cada conjunto, os parâmetros R e R_a foram variados segundo o critério $R = R_a$. As próximas sessões apresentam os resultados das simulações não-lineares e da análise com as técnicas comparativas para três casos: $R = R_a = 1$, $R = R_a = 2$ e $R = R_a = 3$.

⁶Veja apêndice C para uma breve introdução a AEL e resultados.

2.3.1 Caso 1: $R = R_a = 1$

Neste caso, as instabilidades de *fingering* são comparadas nos dois sistemas citados na sessão anterior considerando todos os parâmetros constantes e $R = R_a = 1$. As Figuras 2.15 e 2.16 mostram a evolução da concentração no tempo e seus respectivos perfis de concentração média. A Figura 2.17 mostra a evolução das assimetrias no tempo tanto para os perfis de concentração média longitudinal quanto para os perfis de concentração média transversal. As medidas dos comprimentos de mistura e número de onda médio são mostrados na Figura 2.18.

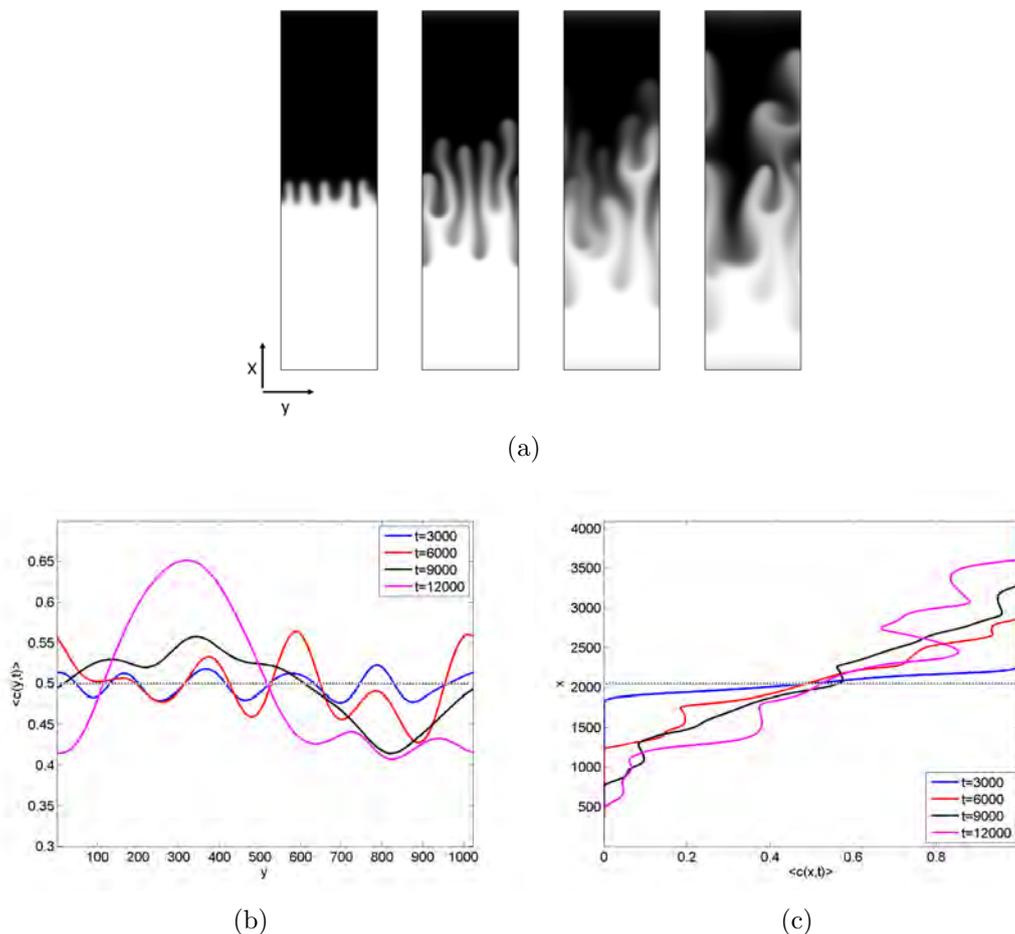


Figura 2.15 - (a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 3000, 6000, 9000$ e 12000) para DF quando $R_a = 1$ e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.

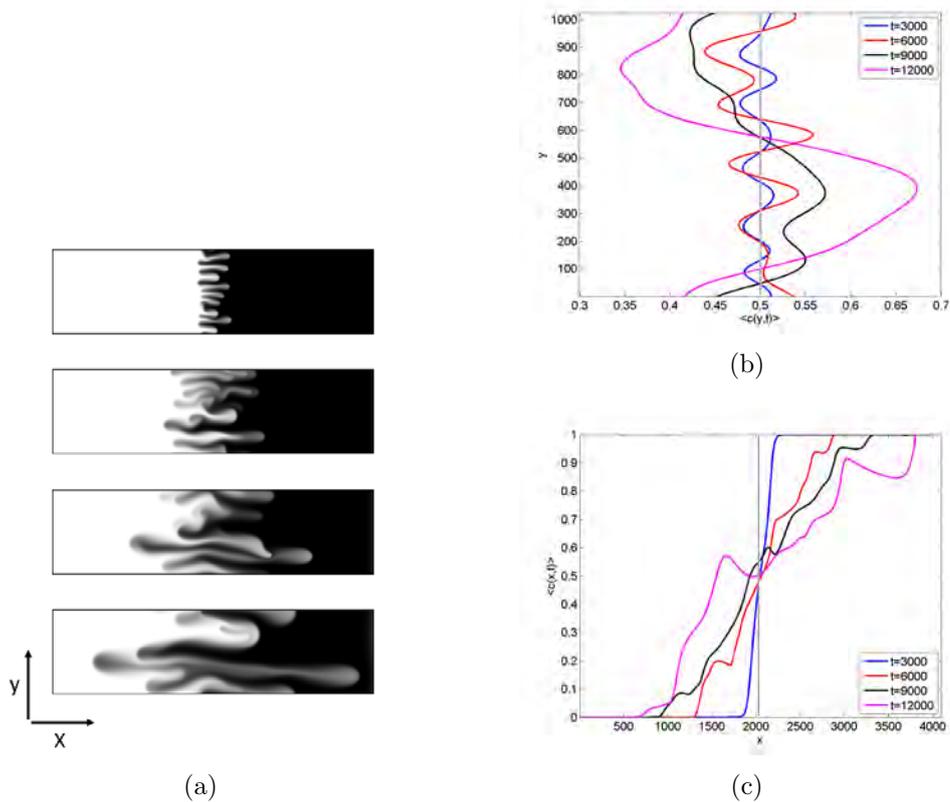


Figura 2.16 - (a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 3000, 6000, 9000$ e 12000) para VF quando $R = 1$, e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.

Para os valores de parâmetros estudados neste caso, sabe-se que os dois padrões tem a mesma curva de dispersão no regime linear (TAN; HOMSY, 1986; MANICKAM; HOMSY, 1995; DE WIT, 2001) e conseqüentemente, um padrão inicial com o mesmo comprimento de onda (compare primeiro quadro das Figuras 2.15(a) e 2.16(a)). Nota-se que no regime não-linear os padrões são diferentes. Isto também ocorre na curva do comprimento de mistura e número de onda médio que apresentam valores maiores para DF do que para VF, nesse regime (Figura 2.18(a-b)). Isto é devido ao fato dos *fingers* da DF estenderem-se mais do que os de VF no regime não-linear. O comprimento de mistura só fornece informações sobre o comprimento dos *fingers* no tempo e o número de onda médio apresenta a variação de número de onda do sistema.

Analisando as curvas do coeficiente de assimetria gradiente para o perfil de concentração média longitudinal (veja Figuras 2.17(c-d)), nota-se que entre $t = 0$ e

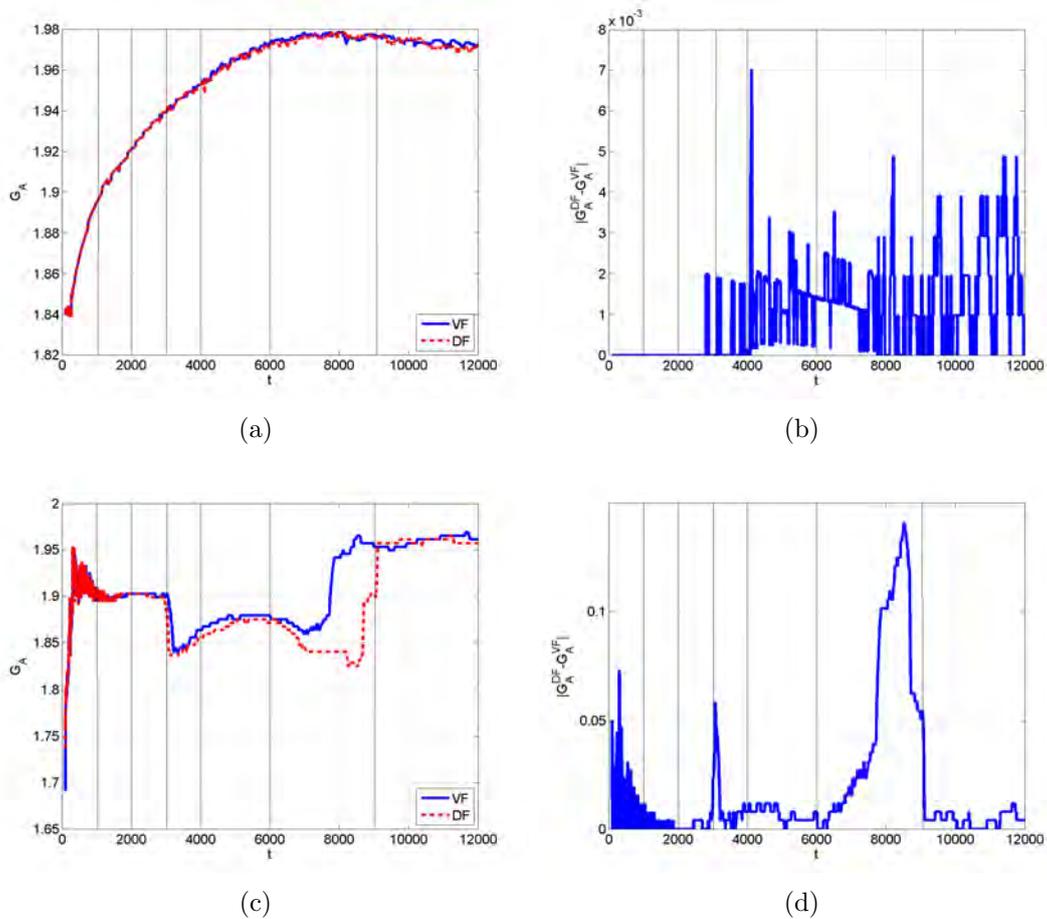


Figura 2.17 - Evolução temporal do coeficiente de assimetria gradiente dos perfis de concentração média (a) transversal e (c) longitudinal, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.15 e 2.16.

$t = 1000$ as Figuras 2.17(c) e 2.17(d) mostram que as diferenças entre os dois tipos de instabilidade apresentam valores da ordem de 10^{-2} , ou seja, as diferenças de assimetrias entre VF e DF são mínimas. Esse intervalo corresponde ao transiente de formação dos *fingers* nos primeiros momentos de simulação onde o comportamento de formação desses processos são equivalentes. Esse transiente é melhor observado no cálculo de G_A para o perfil de concentração média transversal (veja Figuras 2.17(a-b)). Neste caso, observa-se que no início da formação dos *fingers*, DF e VF são processos de formação equivalentes.

O decréscimo no valor das assimetrias para o perfil de concentração média longitudinal no intervalo entre $t = 1000$ e $t = 2000$ mostra o início da formação de *fingers* onde esses são mais simétricos e comportamento equivalente (veja Figura 2.18(b))

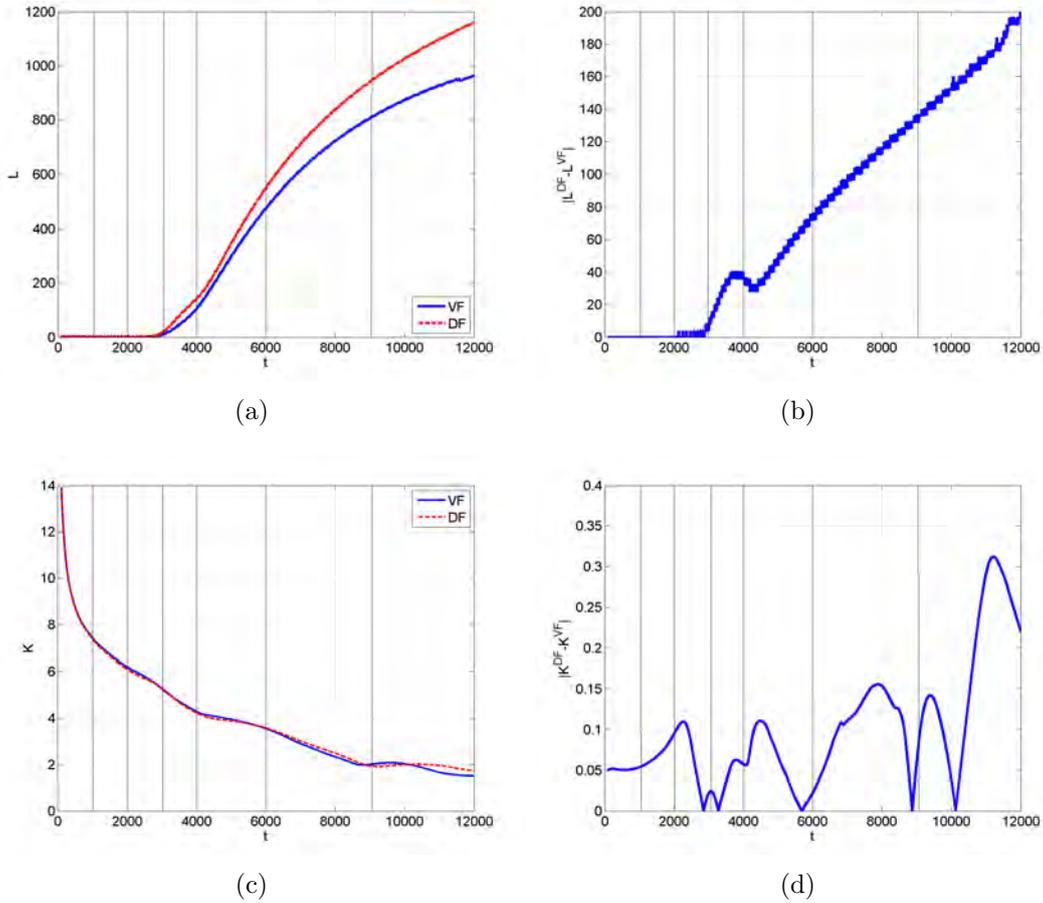


Figura 2.18 - Evolução temporal da medida (a) de comprimento de mistura e (c) número de onda médio, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.15 e 2.16.

onde a diferença é próxima de zero). Esse comportamento continua até $t \approx 3000$ enquanto os *fingers* tem extensão equivalente (veja Figura 2.18(a-b)). Isto poder ser visto na matriz de concentração das Figuras 2.15(a) e 2.16(a), e comparando com a curva de comprimento de mistura e número de onda médio (Figura 2.18(a-c)), onde não há diferenças significativas entre os perfis de concentração média até $t \approx 3000$.

Entre $t \approx 3000$ e $t \approx 4000$ outra diminuição nas assimetrias para o perfil de concentração média longitudinal indica um crescimento nas simetrias de *fingering* com pequenas diferenças entre DF e VF. No perfil de concentração média transversal, o crescimento de *fingering* é confirmado pois o coeficiente de assimetria gradiente aumenta quase linearmente com pequenas diferenças. A mesma observação ocorre com a medida de comprimento de mistura e número de onda médio, onde poucas

mudanças na dinâmica podem ser observadas.

Após $t \approx 4000$ até $t \approx 6000$ os *fingers* tornam-se mais assimétricos e as diferenças entre VF e DF são mais evidentes, tanto no perfil de concentração média transversal quanto longitudinal. Essas assimetrias referem-se ao aumento da diferença entre a ponta e a base dos *fingers*, como pode ser visto pela curva do comprimento de mistura. O número de onda médio mostra valores quase equivalentes para ambas as instabilidades. O comprimento de mistura tende a aumentar apresentando uma pequena queda nas diferenças (Figura 2.18(b) em $t \approx 4100$) indicando comprimento similar entre as instabilidades. Esses resultados em conjunto indicam que as assimetrias podem estar presentes não só em toda a extensão de *fingering*, mas em cada *finger* da instabilidade, evidenciando a presença de difusão não-linear na evolução dos *fingers*.

No perfil de concentração média longitudinal, após $t \approx 6000$ até $t \approx 9000$, as assimetrias mudam evidenciando o início de diferentes interações não-lineares de DF e VF, e de diferenças maiores entre as instabilidades. Além disso, a formação de DF é mais simétrica que a formação de VF. Isso está relacionado ao fato que VF atinge mais rapidamente a forma de um único *finger* do que DF (veja Figura 2.18(c-d) onde VF é menor que DF na curva). No perfil de concentração média transversal, as assimetrias mostram uma saturação após $t \approx 6000$. Isso coincide com a transição de um crescimento convectivo de *fingers* para um lento crescimento dispersivo confirmado pela curva de comprimento de mistura.

Após $t \approx 9000$, DF e VF mostram valores equivalentes de assimetrias para o perfil de concentração média longitudinal. Para o perfil de concentração média transversal as diferenças começam a aumentar, evidenciando que nessa direção os *fingers* se coalescem de maneira mais assimétrica durante os últimos momentos de simulação.

Analisando a influência de padrões locais na assimetria global do sistema (veja Figura 2.19) a partir do perfil de concentração média longitudinal (que mostrou maior sensibilidade em detectar variações de simetria entre os *fingers*) podemos dizer que a riqueza das assimetrias bilaterais na escala global (32×32) é maior que para as assimetrias em escalas locais (escalas que variam entre 4×4 e 23×23), ou seja, há uma dependência de escala nos perfis de concentração média. Também é possível notar que esse comportamento acontece para ambas as instabilidades, sendo VF mais rico em estruturas locais do que DF (veja Figura 2.19(a) onde VF é maior que DF). No

espectro de potência dessa análise, nota-se duas regiões diferentes, ambas com caráter estacionário e persistência fraca⁷ ($\alpha_{1_{VF}} \approx \alpha_{1_{DF}} \approx 0.04$ e $\alpha_{2_{VF}} \approx \alpha_{2_{DF}} \approx 0.5$). Pode-se dizer ainda que devido ao valor de α na primeira região (α_1) ser bem próximo de zero para os dois tipos de fenômenos de *fingering*, os padrões de simetria são fracamente correlacionados para pequenas escalas.

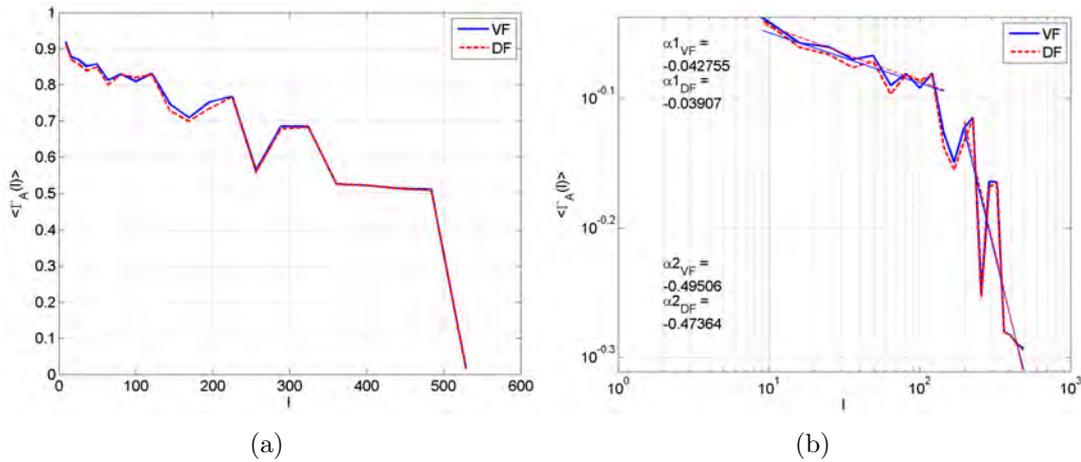


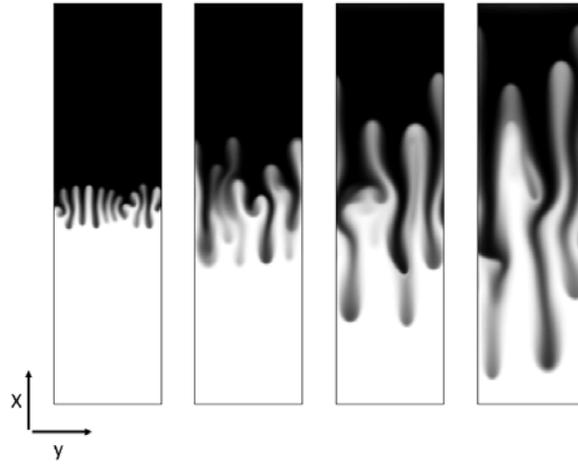
Figura 2.19 - Cálculo da (a) média temporal e (b) espectro de potência da razão de aspecto assimétrica para os perfis de concentração média longitudinal para o sistema quando $R = R_a = 1$.

2.3.2 Caso 2: $R = R_a = 2$

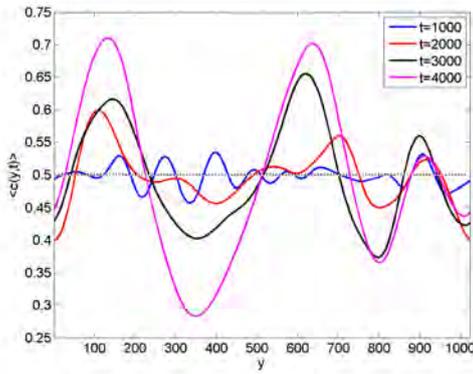
Para o segundo caso de análise, considera-se $R = R_a = 2$, isto é, a convecção é mais importante. As Figuras 2.20 e 2.21 mostram a evolução da concentração para esse sistema e seus respectivos perfis de concentração média, enquanto que a Figura 2.22 mostra a correspondente caracterização utilizando a GPA. A Figura 2.23 mostra a evolução temporal das medidas clássicas de caracterização.

Analisando a evolução temporal do coeficiente de assimetria gradiente para o perfil de

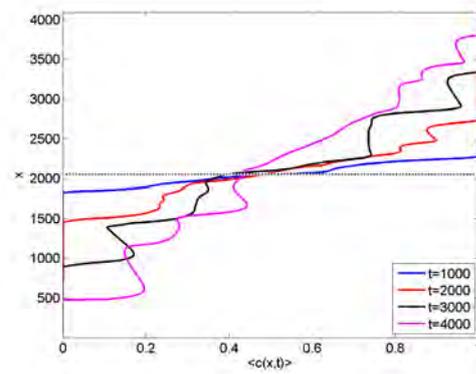
⁷Segundo Malamud e Turcotte (1999), é possível classificar uma série temporal através de seu espectro de potência onde, dada sua lei de potência $1/f^\alpha$, um sinal pode ser classificado da seguinte maneira (MALAMUD; TURCOTTE, 1999): 1) Estacionário: a) $\alpha < 0$ - Anti-persistente, b) $\alpha = 0$ - Não-correlacionado, e c) $0 < \alpha < 1$ - Persistência fraca, e 2) Não-Estacionário: $\alpha > 1$ - Persistência forte. No caso de séries não dependentes do tempo, Peng et al. (1994) analisou sequências de DNA de regiões não-gênicas com relação a correlação de longo-alcance. Para isso, o α da lei de potência dessa análise classifica uma determinada série da seguinte maneira: $\alpha = 0.5$ - característica de série aleatória, $\alpha < 0.5$ - característica de série anti-persistente e $\alpha > 0.5$ - característica de série persistente.



(a)



(b)



(c)

Figura 2.20 - (a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 1000, 2000, 3000$ e 4000) para DF quando $R_a = 2$ e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.

concentração média transversal (veja Figuras 2.22(a-b)) e longitudinal (veja Figuras 2.22(c-d)), nota-se que no intervalo entre $t = 0$ e $t = 250$, a diferença nas assimetrias entre VF e DF é mínima e o coeficiente (G_A) tem altos valores. Esse intervalo é o transiente para formação de *fingers* e o comportamento desses processos de formação (VF e DF) são, dessa forma, equivalentes. A diminuição no valor das assimetrias do perfil de concentração média longitudinal no intervalo entre $t \approx 250$ e $t \approx 500$ mostra que no início da formação dos *fingers* esses são mais simétricos entre si. Após $t = 500$, os dois processos de formação mostram pequenas diferenças que aumentam após $t \approx 750$, onde DF apresenta maior valor de coeficiente de assimetria gradiente,

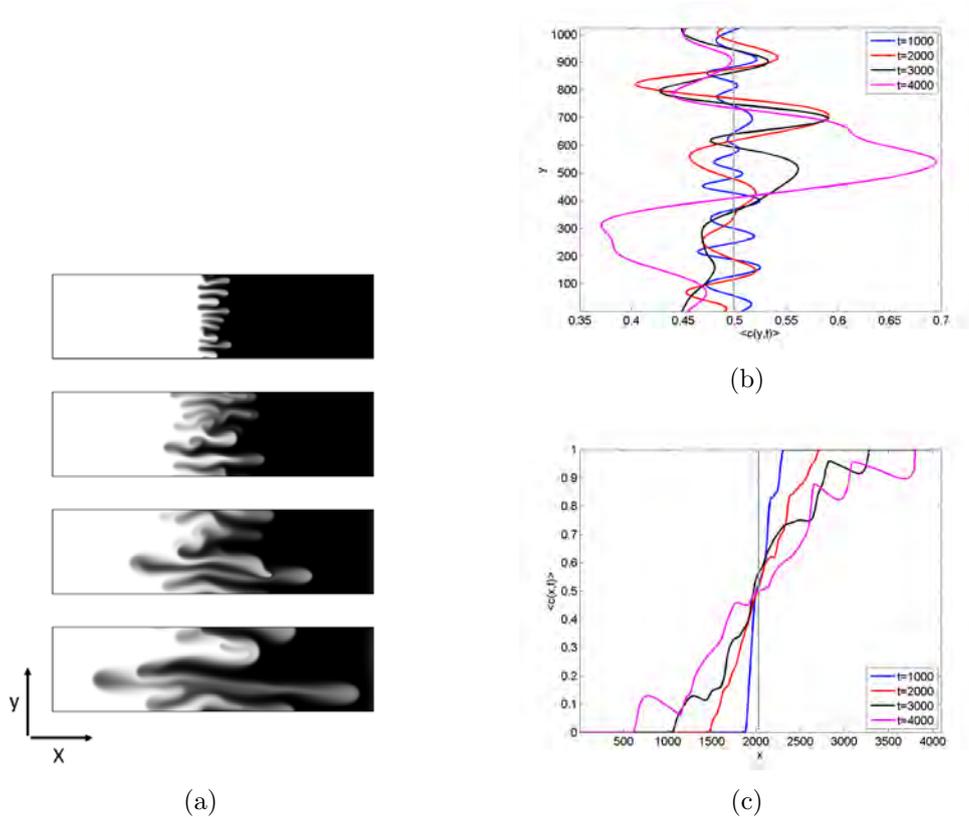


Figura 2.21 - (a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 3000, 6000, 9000$ e 12000) para VF quando $R = 2$, e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.

o que significa que para esse caso, o processo de formação de DF é mais assimétrico que VF. Isso deve-se ao fato dos *fingers* apresentarem a característica de blindagem mais evidente, o que resultou na presença de *fingers* de diferentes comprimentos contrariamente ao VF. No caso das medidas clássicas de caracterização, após $t = 750$, os resultados indicam que começam a surgir diferenças entre as duas instabilidades.

No intervalo entre $t \approx 1000$ e $t \approx 2500$, as diferenças entre os valores de G_A obtidos a partir do perfil de concentração média longitudinal, indicam processos de formação bem diferentes, com relação as assimetrias bilaterais. Isso deve-se ao fato de a convecção, agora característica física do sistema mais evidente do que no caso 1, ser mais influente no processo de formação dos *fingers*. Principalmente para a instabilidade DF que apresenta maior nível de assimetria que VF, característica do processo de blindagem entre os *fingers*. Apesar dessa característica, o comprimento de mistura apresenta uma queda quando $t \approx 2000$, indicando que apesar de características físi-

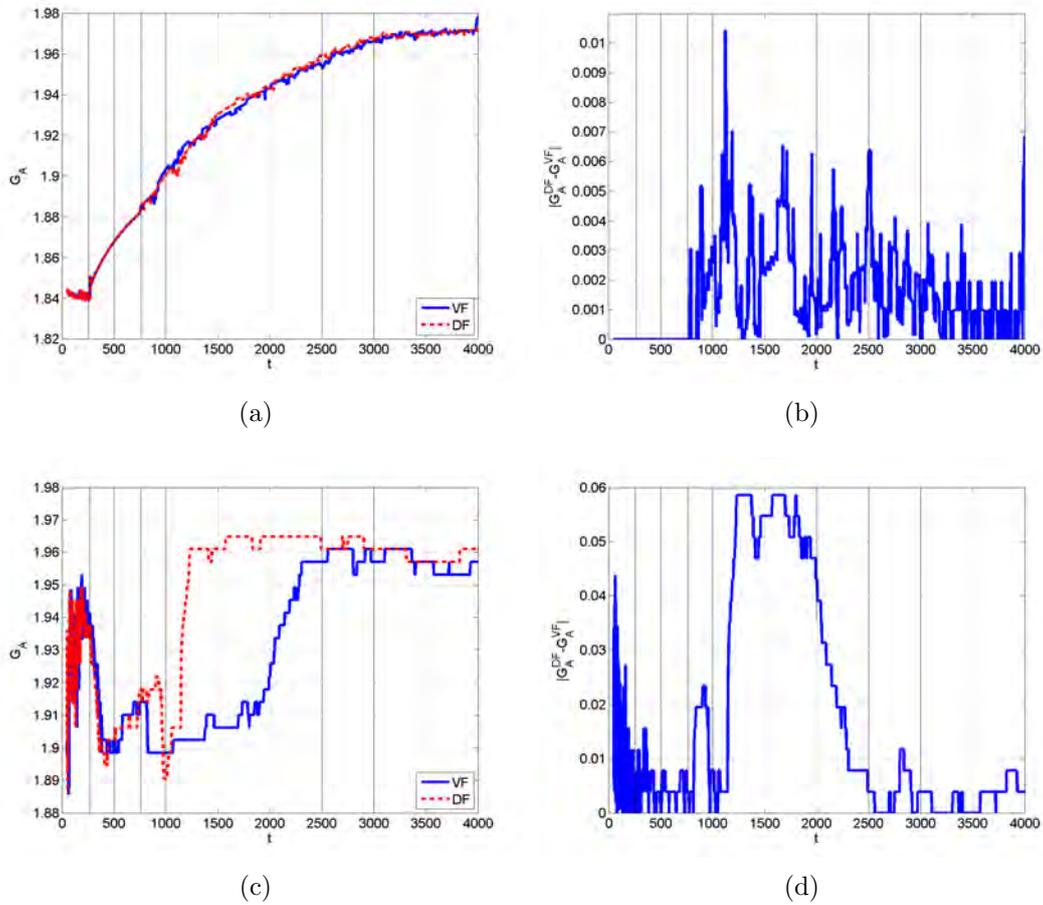


Figura 2.22 - Evolução temporal do coeficiente de assimetria gradiente dos perfis de concentração média (a) transversal e (c) longitudinal, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.20 e 2.21.

cas dominantes diferentes em cada instabilidade, o comprimento de mistura é quase o mesmo.

Após $t \approx 3000$, para o cálculo de G_A para os perfil de concentração média longitudinal, as assimetrias de DF e VF tornam-se similares de novo, enquanto que para o perfil de concentração média transversal, as diferenças também diminuem devido a fusão dos *fingers*. A curva de comprimento de mistura mostra que a formação de DF tem um crescimento mais dispersivo que VF, enquanto que, para o cálculo de número de onda médio, a instabilidade VF tem maior número do que DF em toda a evolução da instabilidade, mostrando a tendência de divisão dos *fingers* maior para VF.

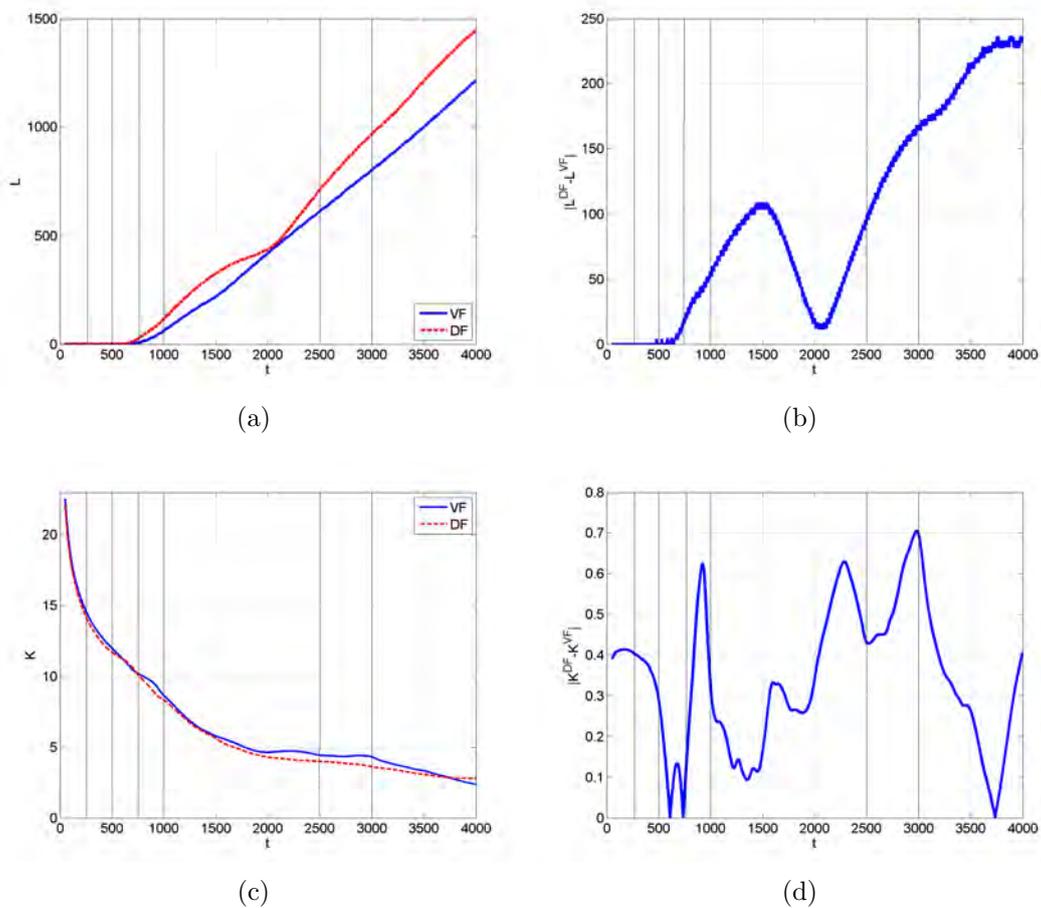


Figura 2.23 - Evolução temporal da medida (a) de comprimento de mistura e (c) número de onda médio, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.20 e 2.21.

Analisando a influência de padrões locais na assimetria global do sistema (veja Figura 2.24) podemos dizer que resultados equivalentes ao caso 1 foram obtidos: no espectro de potência dessa análise, nota-se duas regiões diferentes, ambas com caráter estacionário e persistência fraca. Pode-se dizer ainda que devido ao valor de α na primeira região ser bem próximo de zero para os dois tipos de fenômenos de *fingering*, os padrões de simetria são fracamente correlacionados para pequenas escalas.

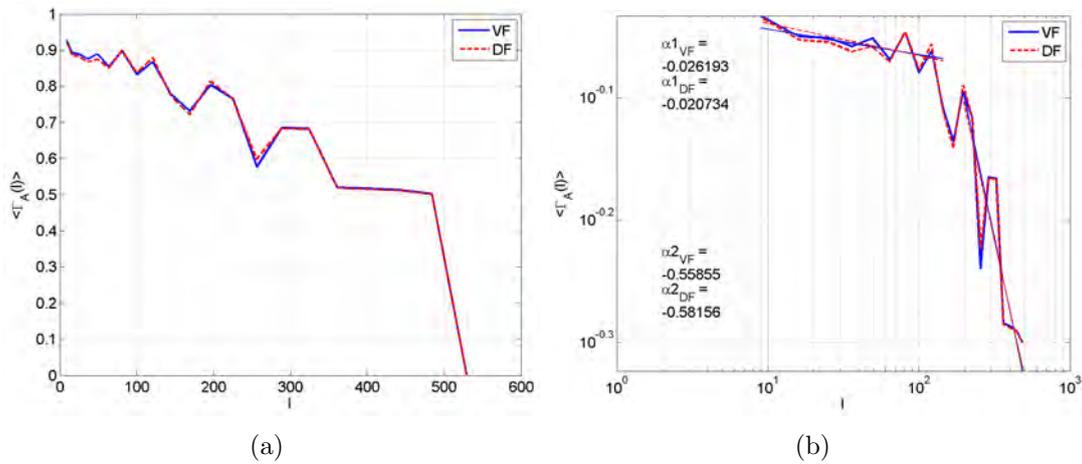


Figura 2.24 - Cálculo da (a) média temporal e (b) espectro de potência da razão de aspecto assimétrica para os perfis de concentração média longitudinal para o sistema quando $R = R_a = 2$.

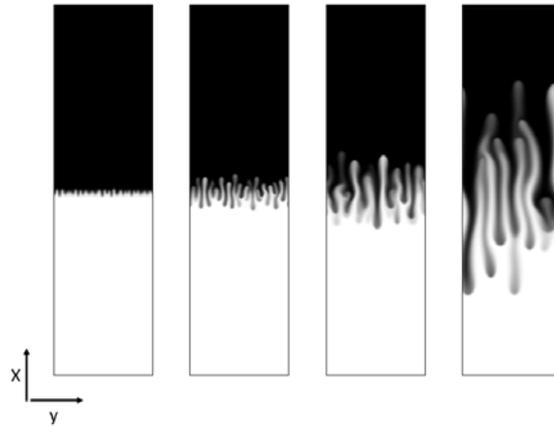
2.3.3 Caso 3: $R = R_a = 3$

Para o caso que $R = R_a = 3$, a evolução da concentração é apresentada nas Figuras 2.25 e 2.26.

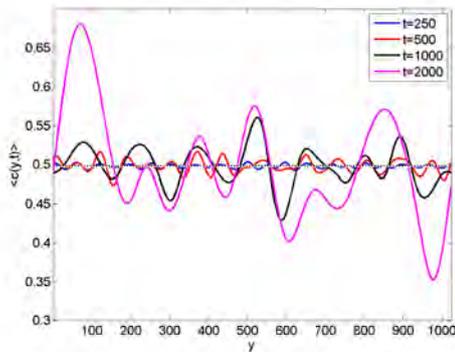
O cálculo do coeficiente de assimetria gradiente mostra que no intervalo entre $t = 0$ e $t \approx 250$ a região transiente também existe como no caso 1 e no caso 2, tanto para o perfil de concentração média longitudinal (veja Figuras 2.27(a) e 2.27(b)) como para o transversal (veja Figuras 2.27(c) e 2.27(d)). Após esse intervalo de tempo, existe a mesma tendência de dinâmica dos *fingers* com relação as assimetrias entre *fingers* até $t \approx 700$, mas o DF é mais assimétrico que VF no sentido transversal.

Após $t \approx 700$, no perfil de concentração média longitudinal, o comportamento muda e VF torna-se mais assimétrico que DF, onde as assimetrias aumentam após $t \approx 1500$. Diferentemente, DF mostra uma diminuição no valor de assimetria nesse tempo. O cálculo do coeficiente de assimetria gradiente para perfil de concentração média transversal mostra a fusão dos *fingers* após $t \approx 700$, onde VF é mais assimétrico que DF. Esse comportamento é validado analisando o número de onda médio, que é menor para VF nesse intervalo.

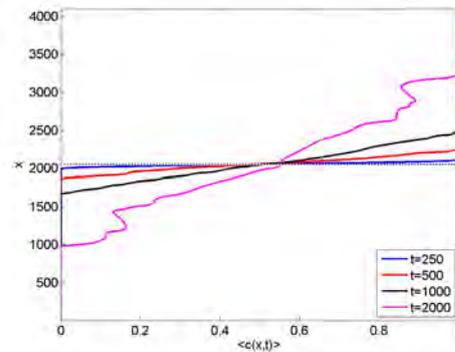
Após $t \approx 1800$, os valores do coeficiente de assimetria gradiente mudam e DF é mais assimétrico para o perfil de concentração média longitudinal, devido a fusão mais evidente em VF, que pode ser visto no perfil de concentração média transversal e



(a)



(b)



(c)

Figura 2.25 - (a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 250, 500, 1000$ e 2000) para DF quando $R_a = 3$ e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.

comparando os últimos quadros das Figuras 2.25(a) e 2.26(a). As diferenças entre DF e VF também podem ser observadas na curva de comprimento de mistura (Figura 2.28(a) e 2.28(b)) onde DF apresenta a instabilidade mais extensa do que VF. Além disso, o número de *fingers* dado pelo número de onda médio mostra que DF tem maior número que VF (Figura 2.28(c) e 2.28(d)).

Analisando a influência de padrões locais na assimetria global do sistema (veja Figura 2.29) podemos dizer que para pequenas escalas, os padrões de VF e DF não mais apresentam razão de aspecto equivalente, ou seja, para pequenas escalas, VF e DF tem dinâmica diferente. Além disso, VF tem mais *fingers* assimétricos entre si do que DF (na Figura 2.29 VF é menor que DF). No espectro de potência dessa análise,

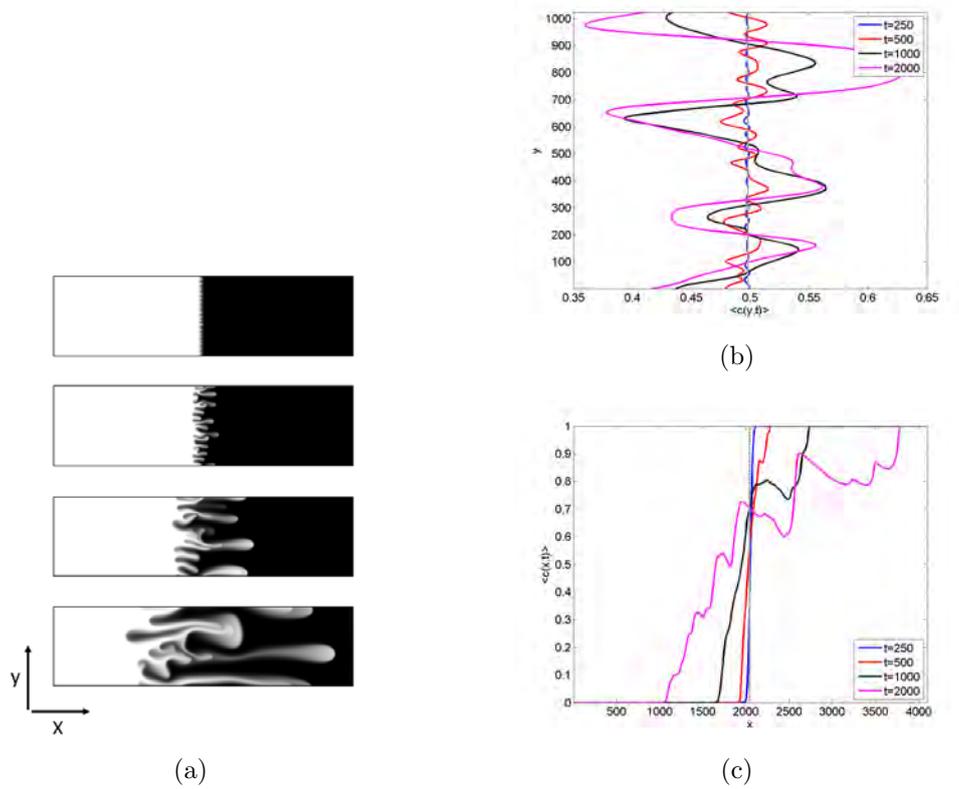


Figura 2.26 - (a) Evolução da matriz de concentração no tempo ($t = 250, 500, 1000$ e 2000) para VF quando $R = 3$, e seus respectivos perfis de concentração média (b) longitudinais e (c) transversais.

ambas instabilidades mantem o carater estacionário e persistência fraca.

Fazendo um gráfico da média da diferença entre as instabilidades para cada medida com relação aos valores de $R = R_a$ (Figura 2.30), observa-se uma curva crescente quase-linear. A média temporal considera um tempo inicial para o cálculo maior que o intervalo de transiente de formação das instabilidades, ou seja, os intervalos de tempo de simulação considerados são os seguintes: para $R = R_a = 1$, $1500 < t < 12000$; para $R = R_a = 2$, $750 < t < 4000$; e para $R = R_a = 3$, $280 < t < 2000$.

Dessa forma pode-se concluir que variando o valor de $R = R_a$, a diferença de instabilidades aumentam conforme o valor de $R = R_a$ aumenta. Isto indica que as propriedades de *fingering* são diferentes ou mais atenuantes conforme o valor de $R = R_a$ varia. Outra importante característica ocorre no caso da média das diferenças para a medida de comprimento de mistura, L . O valor da média diminui, atingindo um valor maior para $R = R_a = 2$. Esse resultado mostra que a exten-

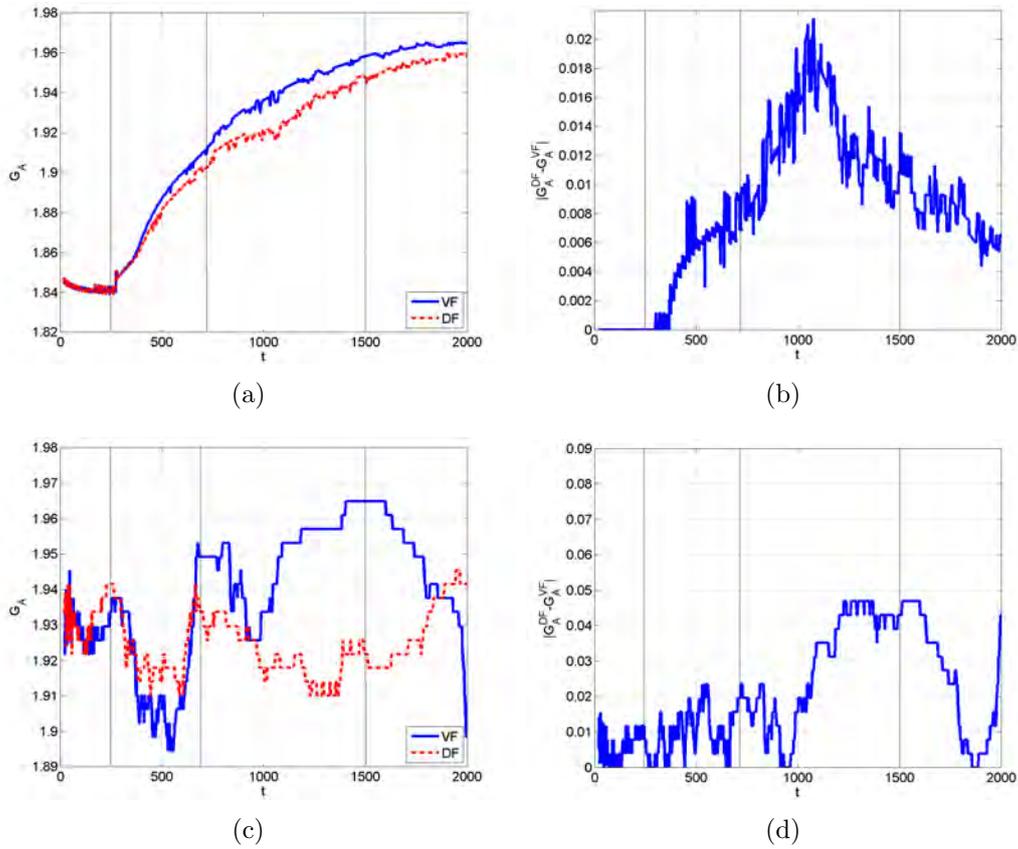


Figura 2.27 - Evolução temporal do coeficiente de assimetria gradiente dos perfis de concentração média (a) transversal e (c) longitudinal, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.25 e 2.26.

são das instabilidades são mais parecidas conforme $R = R_a$ aumenta, exceto para $R = R_a = 2$.

Sabendo que as instabilidades apresentam diferentes padrões conforme varia o valor de $R = R_a$, uma questão importante é como essas instabilidades podem variar se submetidas a diferentes valores de constantes gravitacionais. A próxima seção apresenta os resultados para diferentes valores de R_a considerando as constantes gravitacionais dos planetas que formam o sistema solar, e também a Lua.

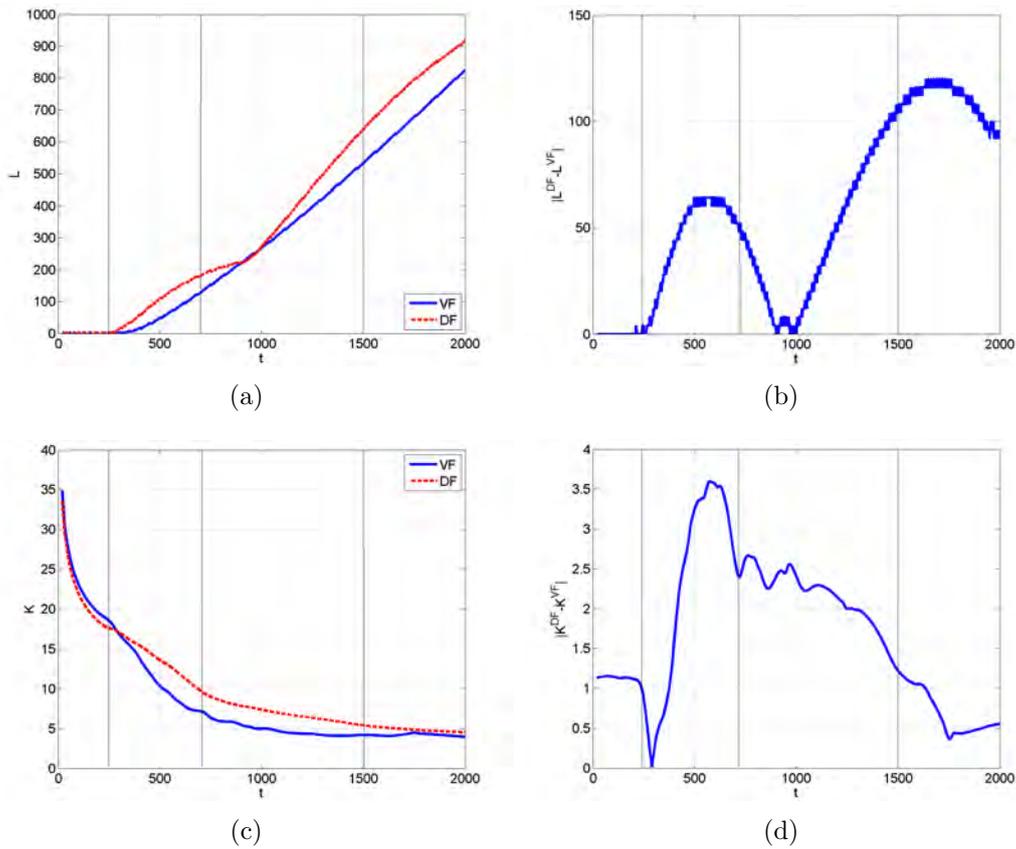


Figura 2.28 - Evolução temporal da medida (a) de comprimento de mistura e (c) número de onda médio, e suas respectivas diferenças ((b) e (d)) para os sistemas mostrados nas Figuras 2.25 e 2.26.

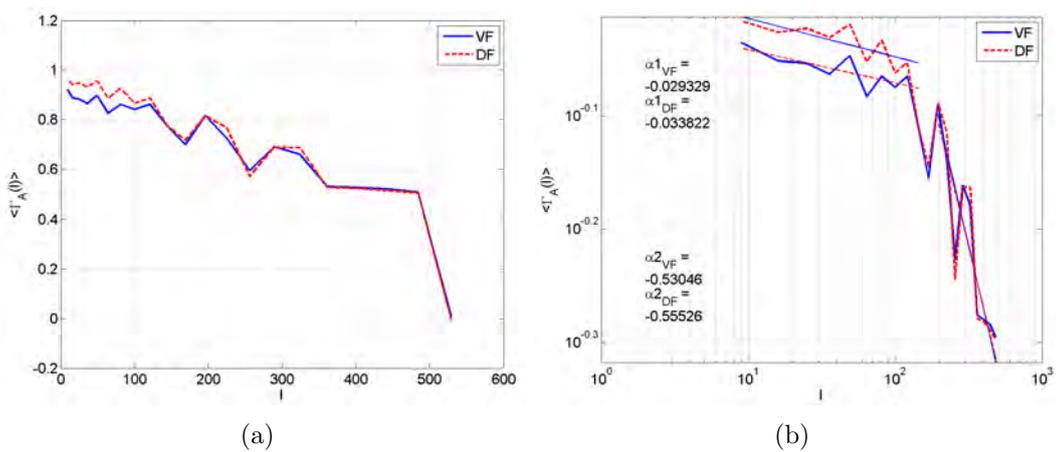


Figura 2.29 - Cálculo da (a) média temporal e (b) espectro de potência da razão de aspecto assimétrica para os perfis de concentração média longitudinal para o sistema quando $R = R_a = 3$.

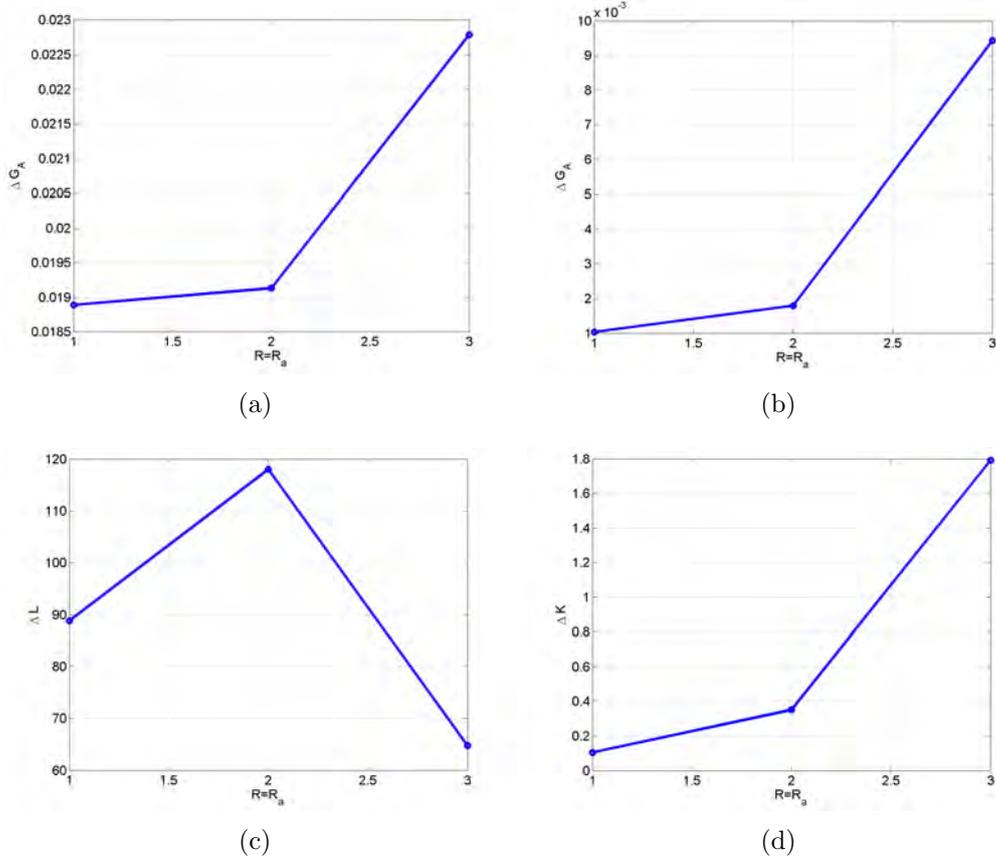


Figura 2.30 - Média das diferenças entre as instabilidades com relação a $R = R_a$ para o cálculo de G_A para os perfis de concentração média (a) transversais e (b) longitudinais, (c) comprimento de mistura e (d) número de onda médio.

2.3.4 Aplicação em Ciência Espacial

A instabilidade *fingering* de densidade, como descrito anteriormente, está diretamente relacionada as variações de densidade entre os fluidos, sendo os padrões influenciados pela difusividade resultante da mistura dos fluidos. Além disso, essa instabilidade também é diretamente relacionada ao valor da constante gravitacional pelo número de Rayleigh (R_a). A variação da densidade com relação a concentração é utilizada na maioria dos trabalhos encontrados na literatura. O valor da gravidade utilizada nestes trabalhos é o valor da gravidade sobre a superfície equatorial da Terra.

Neste trabalho analisa-se a dinâmica de formação dos padrões de *fingering* onde o sistema é submetido a variação de R_a com relação ao valor da constante gravitaci-

Tabela 2.1 - Valores de R_a para diferentes corpos celestes.

Planeta	\vec{g} (m/s^2)	R_a
Terra	9,7660	1
Mercurio	3,7000	0,37887
Vênus	8,8700	0,90825
Marte	3,6930	0,37815
Jupiter	20,8700	2,13701
Saturno	10,4000	1,06492
Urano	8,4300	0,86320
Netuno	10,7100	1,09666
Plutão	0,8100	0,08294
Lua (satélite natural da Terra)	1,6220	0,16609

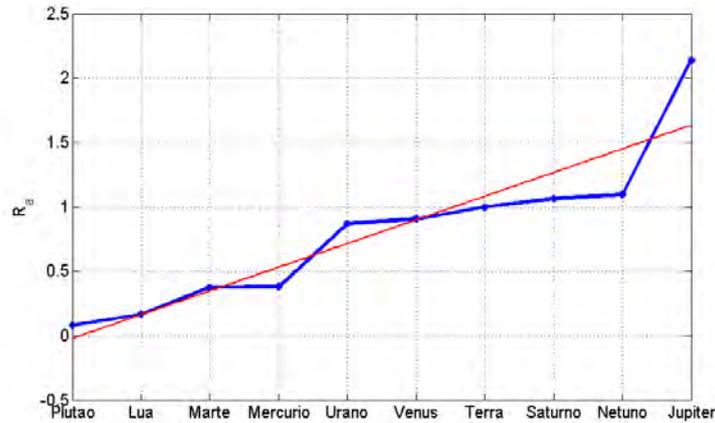


Figura 2.31 - Variação de R_a para os corpos celestes da Tabela 2.1.

onal. Desta forma, o valor da densidade é constante e R_a varia conforme o valor da constante gravitacional dos planetas que compõe o sistema solar e a Lua (satélite natural da Terra). Sendo o caso canônico o do planeta Terra onde $\vec{g} = 9,766m/s^2$ (NASA, 2006), então apresenta-se na Tabela 2.1 os seguintes valores de \vec{g} para esses corpos celestes. A Figura 2.31 apresenta a variação de R_a para os diferentes corpos celestes em ordem crescente de valores de constante gravitacional, onde observa-se um crescimento quase linear desses valores.

A Figura 2.32 apresenta o cálculo do coeficiente de assimetria gradiente do perfil de concentração média longitudinal para todos os corpos celestes. Este resultado mostra que existem dois grupos com diferentes níveis de assimetria. Dessa forma, com

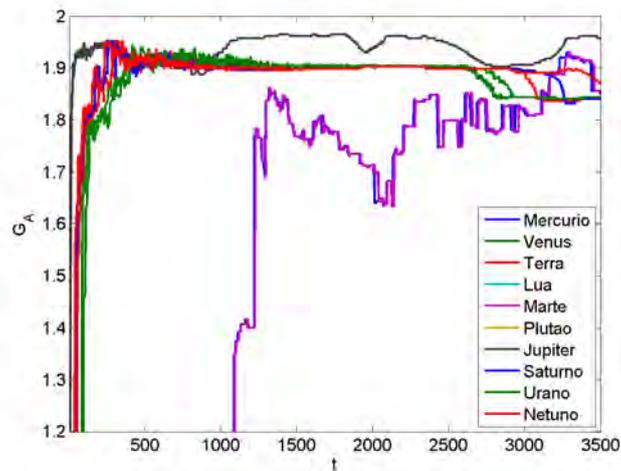
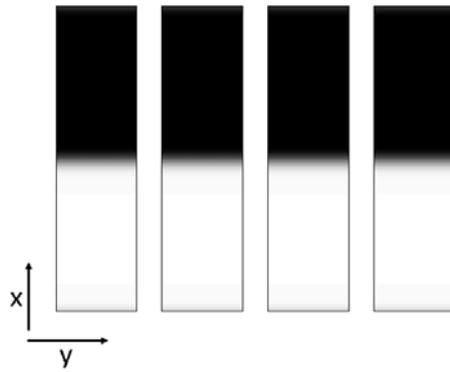


Figura 2.32 - Cálculo do coeficiente de assimetria gradiente para os corpos celestes da Tabela 2.1.

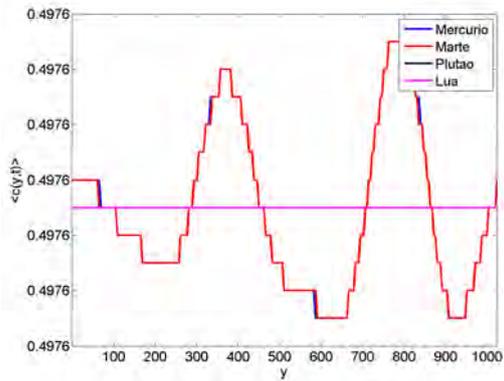
relação a gravidade, pode-se separar esses corpos celestes em dois grupos: aqueles cujo valor de $R_a < 0,5$ e aqueles cujo o valor de $R_a > 0,5$. Dessa forma, o primeiro grupo contém Mercúrio, Marte, Plutão e Lua, e o segundo grupo contém os demais corpos celestes. As Figuras 2.33 e 2.34 apresentam o cálculo do coeficiente de assimetria gradiente para os dois grupos diferentes.

Os resultados mostram que modificações nas simetrias entre *fingers* ocorrem para corpos celestes que tem constante gravitacional maior do que a da Terra. Neste trabalho os corpos celestes Plutão e Lua não apresentam nenhum tipo de quebra de simetria entre os *fingers* para os perfis de concentração média longitudinal. Entretanto, este primeiro grupo (Mercúrio, Marte, Plutão e Lua) apresenta variações para o perfil de concentração média transversal equivalentes.

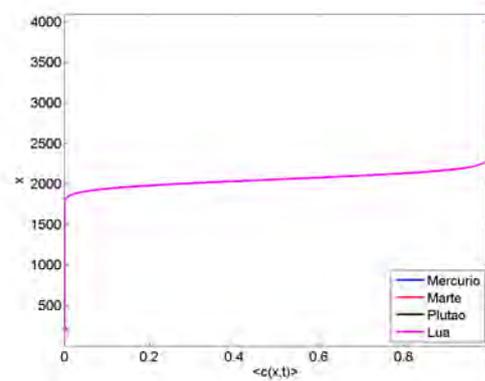
Para corpos celestes com valor de constante gravitacional maior que da Terra a quebra de simetria entre os *fingers* ocorre para todos os corpos celestes considerados para ambos perfis de concentração média. Particularmente, Júpiter, que tem constante gravitacional duas vezes maior que o valor da constante gravitacional da Terra, é o corpo celeste que apresenta maior nível de quebra de simetria entre os *fingers*, destacando-se no cálculo do coeficiente de assimetria gradiente para ambos os perfis.



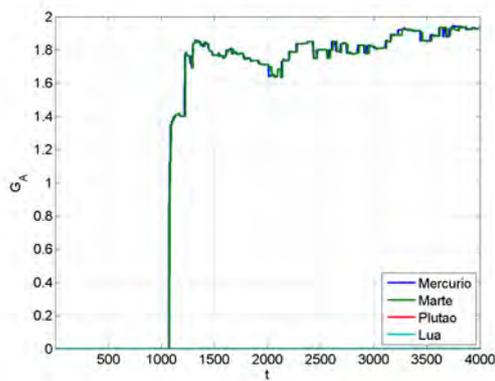
(a)



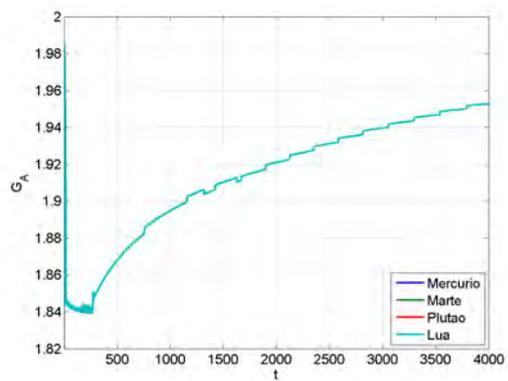
(b)



(c)

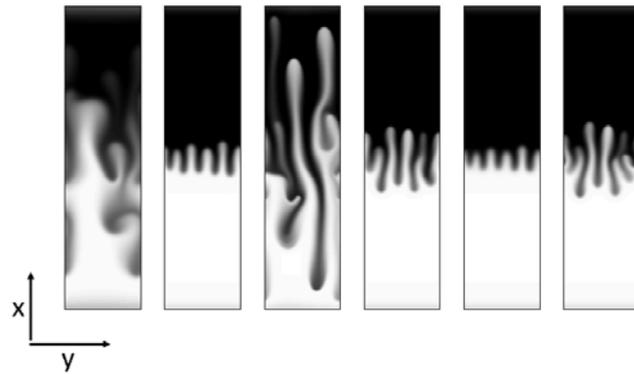


(d)

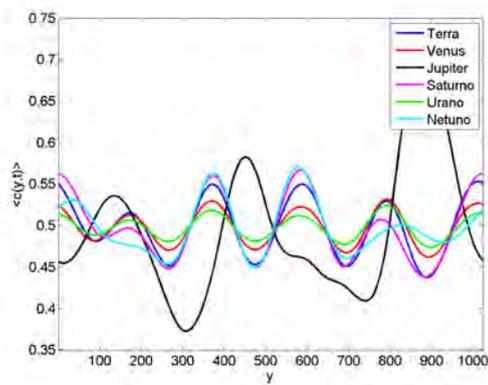


(e)

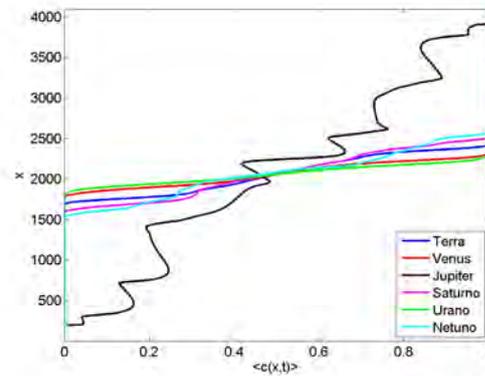
Figura 2.33 - Matrizes de concentração em $t = 4000$ para os corpos celestes (a) Mercúrio, Marte, Plutão e Lua, e seus respectivos perfis de concentração de média (b) longitudinal e (c) transversal, e cálculo do coeficiente de assimetria gradiente dos perfis de concentração média (d) longitudinal e (e) transversal desses corpos.



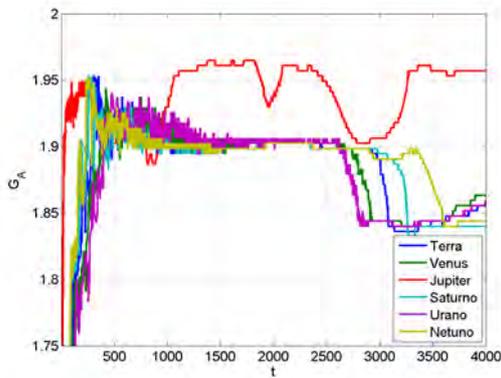
(a)



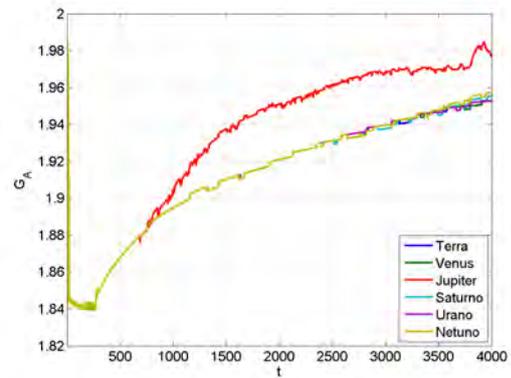
(b)



(c)



(d)



(e)

Figura 2.34 - Matrizes de concentração em $t = 4000$ para os corpos celestes (a) Terra, Vênus, Júpiter, Saturno, Urano, Netuno, respectivamente, e seus respectivos perfis de concentração de média (b) longitudinal e (c) transversal, e cálculo do coeficiente de assimetria gradiente dos perfis de concentração média (d) longitudinal e (e) transversal desses corpos.

2.4 Síntese dos Resultados

Os resultados desta parte do trabalho mostram que o coeficiente de assimetria gradiente da técnica GPA é capaz de diagnosticar mudanças nas simetrias bilaterais dos perfis de concentração média de VF e de DF, tanto no regime linear quanto no regime não-linear. Os resultados indicam que o G_A fornece mais informações sobre as assimetrias do sistema do que as medidas clássicas de caracterização: comprimento de mistura e número de onda médio (BARONI et al., 2008).

No caso do perfil de concentração média longitudinal, o coeficiente de assimetria gradiente é capaz de identificar a mudança na simetria dos *fingers* no tempo devido a processos como blindagem com relação aos vizinhos, coalescência de *fingers* e fragmentação de um *finger*, evidenciando o comportamento da difusão não-linear no crescimento da interface entre dois fluidos. Para o perfil de concentração média transversal, o coeficiente de assimetria gradiente fornece mais informações sobre a velocidade de crescimento dos *fingers*. Além disso, os resultados obtidos para o caso 1 evidenciam a similaridade entre VF e DF, inclusive no regime não-linear das simulações. Entretanto, os resultados dessa parte do trabalho também apresentam, de forma inédita, o intervalo de tempo onde existe a quebra de simetria dos processos de formação durante o regime não-linear das simulações, e que no últimos instantes de simulação, as instabilidades tendem a apresentar caracter simétrico equivalente.

Além da caracterização de padrões de *fingering* com relação a quebra de simetria entre *fingers*, o coeficiente de assimetria gradiente através da razão de aspecto de assimetria sugere uma identificação se determinado sistema é estacionário ou não e se apresenta persistência ou não de níveis de assimetria. O espectro de potência indica uma transição de fase quando $\ell \approx 10^2$.

Com relação a variação da constante gravitacional, os resultados indicam que corpos celestes com valores de constante gravitacional menor do que a da Terra, não apresentam quebras de simetria entre os *fingers*. Entretanto, corpos celestes com valores de constante gravitacional duas vezes maior do que a Terra, apresentam níveis de assimetria entre os *fingers* mais altos. Este tipo de resultado contribui para avanços nas áreas experimental e teórica de dinâmica de fluidos em diferentes condições de gravidade, em especial para o estudo da formação de padrões complexos do tipo *fingers* em experimentos a bordo de missões espaciais.

No próximo capítulo discute-se uma possível transição para uma dinâmica complexa que ocorre na interface entre duas espécies químicas.

3 SISTEMA REATIVO-DIFUSIVO-ADVECTIVO

Neste capítulo estuda-se a interação entre duas espécies químicas a partir das instabilidades que podem surgir na interface entre elas e que geram padrões estruturais complexos. Essas instabilidades podem ocorrer tanto por mecanismos de reação-difusão assim como devido a movimentos convectivos do fluido.

Como discutido no capítulo anterior, a instabilidade conhecida como instabilidade difusiva deforma a frente de propagação do sistema de uma interface plana para uma modulação celular (Figura 3.1(a)). Os padrões difusivos aparecem se as duas espécies químicas difundem com diferentes razões de difusão. Essa instabilidade que depende de um valor crítico de razão de difusão, independe do valor da constante gravitacional. Experimentalmente, a escala temporal necessária para a formação de padrões puramente difusivos é da ordem de horas.

Se uma das espécies químicas é mais pesada do que a outra e é colocada no topo desta, a interface perde estabilidade e deforma em *fingers* (Figura 3.1(b)). Essa instabilidade é conhecida como instabilidade de Rayleigh-Taylor e acontece quando diferenças de densidade e/ou viscosidade mudam durante a reação. Experimentalmente, a escala temporal para o início da formação de *fingering* é da ordem de segundos.

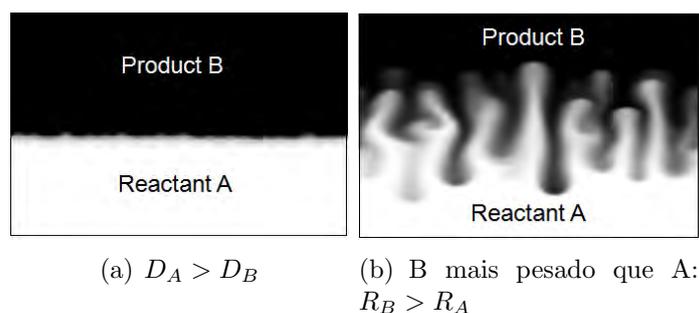


Figura 3.1 - Exemplo de interface onde ocorre a (a) instabilidade difusiva e onde ocorre a (b) instabilidade de Rayleigh-Taylor.

Considerando a mesma escala temporal para o surgimento de ambas instabilidades, sabe-se que no regime não-linear das simulações, a interação entre as instabilidades de Rayleigh-Taylor e difusiva resulta em uma dinâmica complexa dominada por uma

sucessão irregular de surgimento e desaparecimento de *fingers* (D'HERNONCOURT et al., 2007). Esta parte do trabalho dedica-se a: (i) identificar e quantificar o início da transição para a dinâmica complexa quando as duas instabilidades interagem e, (ii) relacionar este estudo ao regime de caos espaço-temporal observado na dinâmica da instabilidade puramente difusiva (MALEVANETS et al., 1995).

As próximas sessões apresentam uma breve descrição do sistema utilizado e as técnicas de identificação de transição para uma dinâmica complexa.

3.1 Modelo do sistema

Frentes de propagação reativas-difusivas podem tornar-se transversalmente instáveis de diferentes maneiras. Exemplos de instabilidades que deformam uma interface são as instabilidades difusivas e as instabilidades ascensionais. A instabilidade ascensional é causada por gradientes de densidade gerados devido a alterações na composição química das concentrações. No caso da instabilidade difusiva, esta ocorre se o coeficiente de difusão do reagente é suficientemente grande comparado ao produto.

Para obter um sistema que apresenta uma interação dessas instabilidades, utilizou-se um modelo de três elementos (reagente-produto-reagente). Considerando a reação autocatalítica $A + 2B \rightarrow 3B$, o sistema é um meio poroso bidimensional ou uma célula de Hele-Shaw de tamanho $L_x \times L_y$ orientado verticalmente num campo gravitacional \vec{g} (veja Figura 3.2).

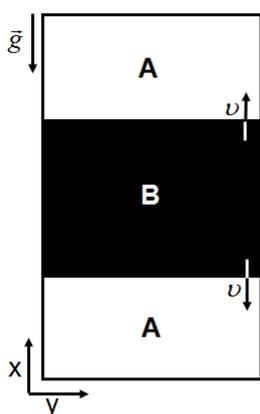


Figura 3.2 - Esboço do sistema.

A reação é iniciada no meio da célula resultando em frentes ascendentes e descendentes. A distância entre as placas (d) da célula de Hele-Shaw é suficientemente menor que $L_{x,y}$ e o fluido incompressível é descrito pela Lei de Darcy bidimensional (Equações 3.1 e 3.2). A dinâmica do sistema é observada pela solução da equação de reação-difusão-convecção da concentração de A (c_a) e de B (c_b). O modelo é composto pelo seguinte sistema de equações (D'HERNONCOURT et al., 2007):

$$\underline{\nabla} \cdot \underline{u} = 0 \quad (3.1)$$

$$\underline{\nabla} p = -\frac{\mu}{\kappa} \underline{u} - \rho(c_a, b) \underline{g} \quad (3.2)$$

$$\frac{\partial c_a}{\partial t} + \underline{u} \cdot \underline{\nabla} c_a = D_A \nabla^2 c_a - k_0 c_a c_b^2 \quad (3.3)$$

$$\frac{\partial c_b}{\partial t} + \underline{u} \cdot \underline{\nabla} c_b = D_B \nabla^2 c_b + k_0 c_a c_b^2. \quad (3.4)$$

As constantes do sistema são: os coeficientes de difusão de A (D_A) e de B (D_B), a aceleração da gravidade (\underline{g}) e a viscosidade (μ). O termo p representa a pressão e $\kappa = d^2/12$ é a permeabilidade do meio poroso. O termo $k_0 c_a c_b^2$ é a razão de reação onde c_a e c_b são as concentrações do reagente A e do produto B respectivamente, e k_0 é a constante cinética.

A densidade durante a reação é dada pela aproximação de Boussinesq¹ (TURNER, 1973) com uma equação de estado $\rho(c_a, c_b) = \rho_0 + \gamma_a c_a + \gamma_b c_b$ onde $\rho_0 = \rho(0, 0)$ é a densidade do fluido sem o reagente A e o produto B , e $\gamma_{a,b}$ são os coeficientes positivos de expansão do soluto de A e B (D'HERNONCOURT et al., 2007).

Introduzindo $T_0 = \frac{1}{k_0 c_{a0}^2}$ como escala temporal, $L_0 = \frac{\sqrt{D_A}}{k_0 c_{a0}^2}$ como comprimento de escala e $U_0 = \sqrt{D_A k_0 c_{a0}^2}$ como velocidade característica, as equações adimensionais são dadas abaixo, onde a densidade é escalada por $\frac{\rho}{\delta\rho}$ sendo $\delta\rho = (\gamma_a - \gamma_b) c_{a0}$ (D'HERNONCOURT et al., 2007):

$$\underline{\nabla} \cdot \underline{u} = 0 \quad (3.5)$$

$$\underline{\nabla} p = -u + [R_a c_a + R_b c_b] \underline{i}_x \quad (3.6)$$

$$\frac{\partial c_a}{\partial t} + \underline{u} \cdot \underline{\nabla} c_a = \nabla^2 c_a - c_a c_b^2 \quad (3.7)$$

$$\frac{\partial c_b}{\partial t} + \underline{u} \cdot \underline{\nabla} c_b = D \nabla^2 c_b + c_a c_b^2 \quad (3.8)$$

¹A aproximação de Joseph Valentin Boussinesq (BOUSSINESQ, 1903) consiste em negligenciar as variações de densidades em todos os termos da equação, exceto no termo de força ascensional (ou força peso).

A razão de difusão (D) e o número de Rayleigh das espécies (R_a e R_b) são dados por

$$D = \frac{D_B}{D_A}, R_a = \frac{\gamma_a \kappa g}{\mu \sqrt{D_A k_0}} \text{ e } R_b = \frac{\gamma_b \kappa g}{\mu \sqrt{D_B k_0}}. \quad (3.9)$$

A razão entre R_a e R_b é $\frac{R_b}{R_a} = \frac{\gamma_b}{\gamma_a}$. Fazendo $\frac{\gamma_b}{\gamma_a}$ igual a uma constante φ , nesta parte do trabalho, estuda-se três diferentes casos para $R_b = \varphi R_a$: $\varphi = 0$, $\varphi = 0.5$ e $\varphi = 2$. Quando $R_a = R_b = 0$, isto é, no caso de sistemas reativo-difusivos, a instabilidade difusiva ocorre nas duas frentes de propagação (MALEVANETS et al., 1995; MERKIN; KISS, 2005). No caso da influência da convecção, quando a densidade diminui durante a reação ($R_a > R_b$), as frentes ascendentes são ascencionalmente instáveis, enquanto que quando a densidade aumenta durante a reação ($R_a < R_b$), as frentes descendentes são ascencionalmente instáveis (D'HERNONCOURT et al., 2007; DE WIT, 2007; D'HERNONCOURT et al., 2009b).

Para sistemas suficientemente grandes, quando $R_a = R_b = 0$ e $D = D_B/D_A < D_c$, tanto as frentes descendentes como as frentes ascendentes são ascencionalmente instáveis (HORVÁTH et al., 1993; MALEVANETS et al., 1995; D'HERNONCOURT et al., 2007). O regime conhecido como *biscala chaos* (possivelmente um tipo de caos espaço-temporal²) foi observado para esse sistema quando a razão de difusão diminui (MALEVANETS et al., 1995). Nesta parte do trabalho, esse sistema foi utilizado para caracterizar a formação de uma dinâmica complexa e identificar em que momento ela ocorre. Para observar a dinâmica complexa desse sistema, utiliza-se mapas espaço-temporais.

3.1.1 Mapas Espaço-Temporais

Para visualizar os padrões de *fingering* são utilizados os mapas espaço-temporais propostos por D'Hernoncourt et al. (2007). Esses mapas mostram a posição do máximo e do mínimo do perfil de concentração média longitudinal ($\langle c(y, t) \rangle$) no tempo (Equação 2.16). Esses mapas são capazes de mostrar a evolução espaço-temporal dos padrões a partir do perfil unidimensional. A obtenção desses mapas pode ser visualizada através do esquema apresentado na Figura 3.3.

Um exemplo de mapa espaço-temporal, no contexto da presente análise, é apresen-

²Enquanto a definição de regime caótico no domínio do tempo é detalhadamente definida, o conceito de caos espaço-temporal não foi ainda completamente definido em dinâmica não-linear.

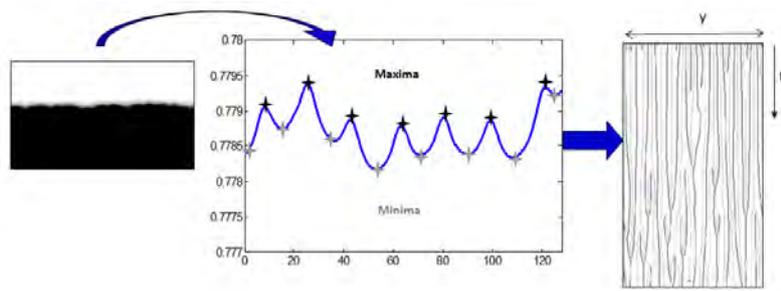


Figura 3.3 - Esquema de obtenção dos mapas espaço-temporais: a partir da matriz de concentração calcula-se o perfil de concentração média longitudinal e localiza-se os máximos e mínimos deste perfil. As posições destes são marcadas no mapa onde no tempo observa-se a evolução dos *fingers*.

tado na Figura 3.4. No caso da Figura 3.4(a) o mapa mostra a tendência de fusão dos *fingers* para um único *finger* dominante. No caso da Figura 3.4(b) observa-se uma dinâmica complexa de surgimento e desaparecimento de *fingers*.

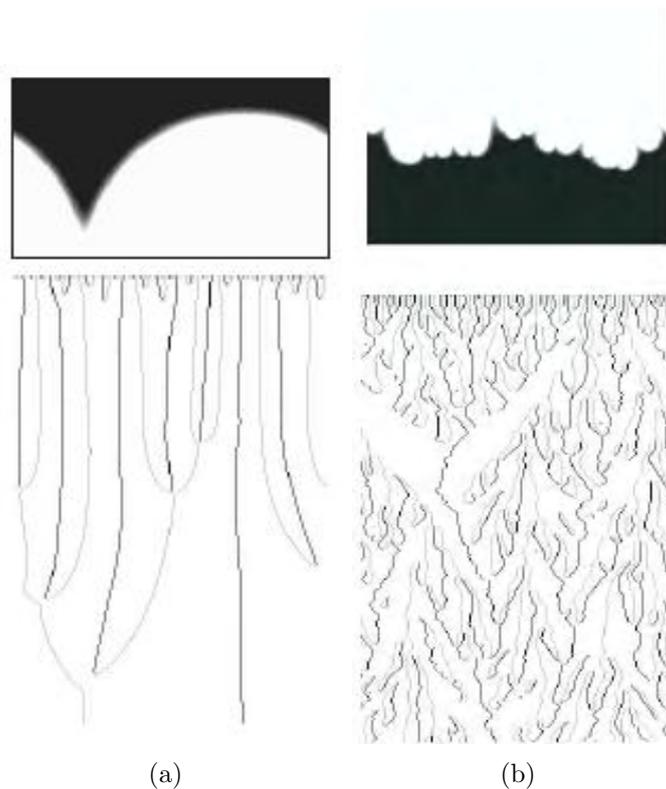


Figura 3.4 - Mapas espaço-temporais de padrões de *fingering*: (a) tendência de formação de um único *finger*, e (b) dinâmica complexa de surgimentos e desaparecimentos de *fingers*.

3.1.2 Simulações Numéricas

As equações adimensionais são numericamente resolvidas usando o método pseudo-espectral introduzido por Tan e Homsy (1986) (veja descrição adaptada do método e pseudo-algoritmo no Apêndice A). As condições de contorno são periódicas nas direções x e y enquanto que a condição inicial é $c_a = 1$, $c_b = 0$ e $\psi = 0$ com uma pequena perturbação em B para iniciar a reação. Todas as simulações são iniciadas com o mesmo ruído e um sistema de comprimento $L_x = 8192$ e largura $L_y = 512$. A discretização espacial usa 2 como razão entre o número de modos espectral e comprimento e largura adimensionais (4096×256). O correspondente passo temporal é $dt = 0.2$.

3.2 Sobre os Dados e Medidas para Análise

Para caracterizar a transição para uma dinâmica complexa, são utilizadas as seguintes ferramentas da análise espectral: espectro de potência e entropia espectral. Neste trabalho também propõe-se o estudo dos padrões de *fingering* usando a função de autocorrelação espacial. Os dados utilizados nessa análise são os perfis de concentração média longitudinal que, de acordo com o observado nos mapas espaço-temporais, mostraram-se capazes de identificar uma dinâmica complexa.

3.2.1 Espectro de Potência

O espectro de potência é uma ferramenta da análise espectral³ frequentemente utilizada para caracterizar periodicidade de um sistema. Além disso, esta ferramenta tem sido usada para caracterizar o grau de desordem espacial de um sistema espaço-temporal. O espectro de potência médio é definido como $\langle |\hat{c}|^2 \rangle$ onde \hat{c} é a transformada espacial discreta de Fourier de um dado perfil de concentração média longitudinal $\langle c(y, t) \rangle$:

$$\hat{c}(k, t) = \sum_{j=0}^{N-1} c(j\Delta x, t) e^{-\sqrt{-1}j\Delta x k} \quad (3.10)$$

onde $k = 2\pi m/N$ e $m = 0, 1, 2, \dots, N$.

A caracterização da distribuição de energia (regular ou desordenada) é realizada a partir do espectro $|\hat{c}|^2 \times k$. Esta distribuição da energia pode ser quantificada a partir do cálculo da entropia espectral.

³A determinação do peso relativo de cada uma das componentes periódicas de uma função é chamada de Análise Espectral.

3.2.2 Entropia Espectral

A entropia espectral foi desenvolvida primeiramente por Powell e Percival (1979) para distinguir movimentos regulares e irregulares em sistemas Hamiltonianos (POWELL; PERCIVAL, 1979). Esta medida tem sido utilizada para quantificar a desordem espacial de um sistema e dessa forma tornou-se uma ferramenta importante na caracterização de caos espaço-temporal (XI; GUTNON, 1995; CAKMUR et al., 1997; REMPEL et al., 2007).

A entropia espectral é dada por (POWELL; PERCIVAL, 1979):

$$S(t) = - \sum_{k=1}^N p_{k,t} \ln p_{k,t} \quad (3.11)$$

onde $p_{k,t}$ é o comprimento relativo de modo k tal que

$$p_{k,t} = \frac{|\hat{c}(k, t)|^2}{\sum_k |\hat{c}(k, t)|^2}. \quad (3.12)$$

O termo \hat{c} é a transformada discreta de Fourier de $\langle c(y, t) \rangle$ (veja Equação 3.10).

Se $p_{k,t} = 0$, então $p_{k,t} \ln p_{k,t} = 0$. A normalização da Equação 3.12 assegura que $p_{k,t} \in [0, 1]$ e $\sum_k p_{k,t} = 1$. Desta forma, se $p_{k,t} = 1$ para algum k , então $S(t) = 0$, estado totalmente ordenado. No caso de transição para um estado desordenado, a entropia espectral apresenta um “salto”, indicando uma brusca transição do sistema para uma dinâmica complexa.

3.2.3 Função de Autocorrelação Espacial

A função de autocorrelação, muito conhecida na área de análise de séries temporais, é adaptada nesse trabalho para a análise de séries espaço-temporais. A função de autocorrelação espacial é assim definida como:

$$A_C(t, \ell) = \frac{1}{N - \ell} \sum_{n=1}^{N-\ell} \frac{(c(i, t) - \langle c(t) \rangle)(c(i - \ell, t) - \langle c(t) \rangle)}{\sigma^2} \quad (3.13)$$

onde N é o número de pontos da série espacial, $\langle c(t) \rangle$ é a média da série num determinado instante de tempo t e σ^2 é a sua variância. Essa medida analisa o grau de semelhança da série espacial com ela mesma em um determinado instante de

tempo. Neste trabalho avalia-se a média temporal de A_C . No caso de séries espaço-temporais periódicas, a função de autocorrelação espacial será também periódica. No caso de séries espaço-temporais caóticas, a função de autocorrelação espacial tenderá a zero, pois a superposição da série em diferentes escalas indicará um decréscimo da autocorrelação.

A próxima seção apresenta os resultados obtidos a partir do cálculo das medidas aqui apresentadas.

3.3 Resultados

A interação entre as instabilidades difusiva e de Rayleigh-Taylor (RT) agem de diferentes maneiras e em diferentes escalas de tempo na interface entre dois fluidos. Trabalhos experimentais estudam a dinâmica de interfaces deformadas por essas instabilidades separadamente (HORVÁTH et al., 1993; HORVÁTH; SHOWALTER, 1995; BÁNSÁGI et al., 2004; BÖCKMANN; MÜLLER, 2000; BÖCKMANN; MÜLLER, 2004; D'HERNONCOURT et al., 2007). Alguns trabalhos propõem maneiras diferentes de diminuir a convecção que causa o aparecimento de *fingers* em células de Hele-Shaw verticais (HORVÁTH et al., 2002; RICA et al., 2005), mas nenhum experimento até hoje conseguiu diminuir a escala temporal de início das instabilidades de RT de tal maneira que possa haver interação com os modos difusivos.

Nesta seção apresenta-se os resultados obtidos para essa parte do trabalho onde o objetivo é analisar um sistema supondo que haja interação entre essas duas instabilidades, ou seja, que ambas tenham a mesma escala para o início das instabilidades. Além disso, estabelece-se uma relação com os resultados teóricos obtidos por D'Hernoncourt (2007) e por Malevanets et al. (1995).

Para essa análise estuda-se a variação do número de Rayleigh e do parâmetro de difusão. A análise é feita para os casos das frentes de propagação descendentes (“bottom”) e ascendentes (“top”). São analisados três diferentes casos: $R_b = R_a = 0$, $R_a > R_b$ e $R_a < R_b$. Os resultados são apresentados para os perfis de concentração média de A .

3.3.1 Instabilidades Puramente Difusivas: $R_a = R_b = 0$

Neste caso, de acordo com a Análise de Estabilidade Linear, as instabilidades difusivas ocorrem em ambas frentes (“top” e “bottom”), quando $D < D_c \approx 0,424$

(MALEVANETS et al., 1995; D'HERNONCOURT et al., 2007). Para visualizar as instabilidades, mapas espaço-temporais foram utilizados por D'Hernoncourt et al. (2007). Os defeitos que aparecem nesses mapas podem ser associados ao “surgimento” e “desaparecimento” dos *fingers* no tempo. A análise dos mapas espaço-temporais mostram que para $D < D_c$, o sistema apresenta uma dinâmica complexa caracterizada por sucessivos desaparecimentos e surgimentos dos *fingers*, sendo coerente com as características caóticas para grandes sistemas quando o parâmetro de difusão diminui (HORVÁTH et al., 1993; MALEVANETS et al., 1995). A Figura 3.5 mostra o mapa espaço-temporal para vários valores de D .

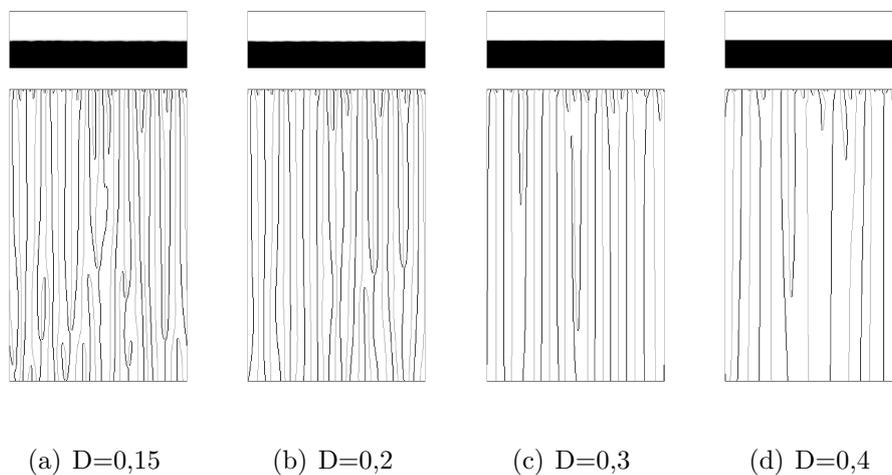


Figura 3.5 - Mapas espaço-temporais das posições de máximo (preto) e de mínimo (cinza) do perfil médio longitudinal para diferentes valores de D e $R_a = R_b = 0$ considerando as frentes ascendentes de A variando de $t = 0$ a $t = 5600$. No topo de cada mapa, a matriz de concentração de A do sistema é apresentada no tempo $t = 5000$.

Essa irregular sucessão de surgimento e desaparecimento de *fingers* acontece especialmente quando $D = 0,15$. Esse resultado é coerente com o caos observado para sistemas grandes: conforme o valor de D aumenta atingindo um valor crítico (D_c), as frentes de propagação tornam-se estáveis (MALEVANETS et al., 1995; D'HERNONCOURT et al., 2007).

Para verificar se existe periodicidade nos perfis e dessa forma quantificar o grau de desordem espacial, calcula-se o espectro de potência. A Figura 3.6 apresenta esses resultados. Para valores de $D < D_c$ (veja Figura 3.6(a)) o espectro de potência

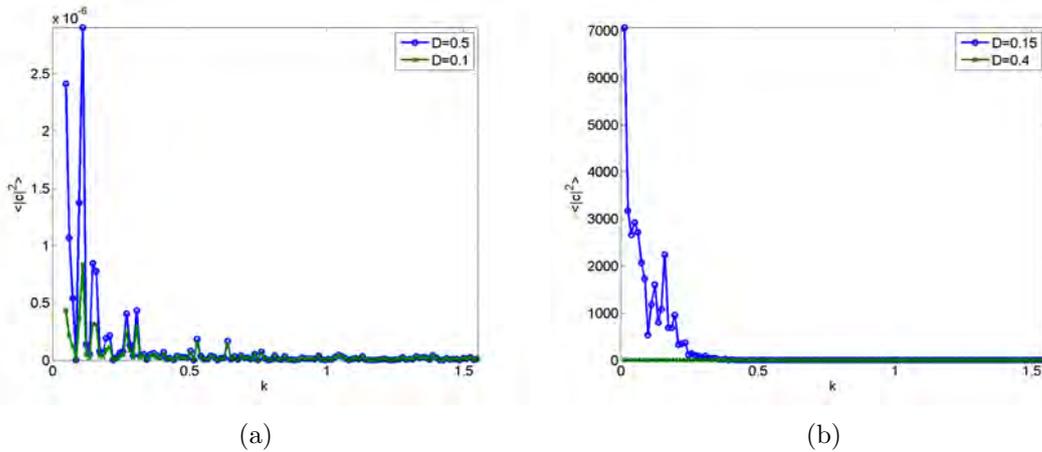


Figura 3.6 - Média temporal do espectro de potência para a frente ascendente do reagente A para instabilidade puramente difusiva: (a) $D > D_c$ e (b) $D < D_c$.

mostra a similaridade entre padrões espaciais ordenados. A Figura 3.6(b) mostra as diferenças entre um padrão espacial ordenado e um padrão espacial desordenado. O espectro de potência mostra um pico em $k \approx 0,15$ indicando o número de onda do modo que cresce mais rapidamente. Este valor não é exato devido a efeitos não-lineares. Além disso, vários picos em torno do principal indica um espalhamento da energia espectral para os outros modos. Esse espalhamento reflete no aumento da desordem espacial que pode ser quantificada pelo cálculo da entropia espectral.

Para quantificar a desordem espacial do sistema, calcula-se a média da entropia espectral no tempo. A Figura 3.7 mostra o resultado obtido para as frentes “top” e “bottom”, que como esperava-se, apresentam resultados equivalentes para as duas frentes, visto que não há influência de convecção em nenhuma das interfaces. Os gráficos também mostram que quando $D \approx 0,15$ a desordem espacial assume o maior valor, $\langle S_t \rangle \approx 1,8$. Com o aumento de D , o valor de $\langle S_t \rangle$ diminui até atingir $\langle S_t \rangle \approx 0$ quando $D = D_c \approx 0,4$. Estes resultados confirmam o observado nos mapas espaço-temporais e são coerentes com os resultados obtidos por [Malevanets et al. \(1995\)](#).

Este resultado também indica que a transição para uma dinâmica complexa acontece entre $D \approx 0,2$ e $D \approx 0,38$. A média temporal da entropia espectral mostra a tendência das frentes permanecerem planares após $D > D_c$.

Calculando a função de autocorrelação espacial (veja Figura 3.8) nota-se que espe-

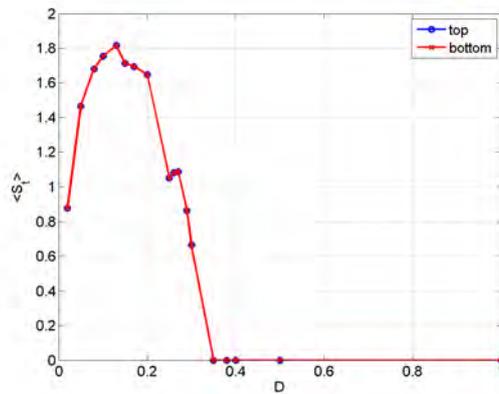


Figura 3.7 - Média temporal da entropia espectral da frente ascendente (curva azul) e da frente descendente (curva vermelha) do reagente A para instabilidade puramente difusiva.

cialmente quando $D = 0,3$ (valor de D próximo a D_c), o sistema apresenta características de uma série periódica. Quando $D = 0,15$, não existe característica de periodicidade e a função de autocorrelação tende a zero.

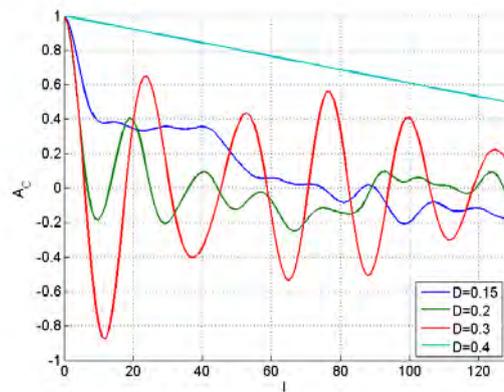


Figura 3.8 - Cálculo da função de autocorrelação da frente ascendente do reagente A para instabilidade puramente difusiva.

Como os resultados apontam que a instabilidade puramente difusa produz interfaces com dinâmica de propagação complexa, e trabalhos anteriores apontam a presença de caos espaço-temporal; para as próximas análises, em que o efeito da convecção é importante, adota-se como caracterização de complexidade devido a difusão, valores da média da entropia espectral em torno de $S_t = 1,8$. Esses resultados são

apresentados nas próximas seções.

3.3.2 Densidade diminui durante a reação: $R_a > R_b$

Pelos resultados da Análise de Estabilidade Linear, sabe-se que neste caso tanto as frentes descendentes como as frentes ascendentes podem tornar-se instáveis quando $R_a = 0,5$ e $R_b = 0,25$ (D'HERNONCOURT et al., 2007; D'HERNONCOURT et al., 2009a). Além disso, quando $D = 0,15$ a curva de dispersão mostra que o sistema com esse coeficiente de difusão apresenta a maior razão de crescimento para as frentes ascendentes. Os mapas espaço-temporais apresentam essas instabilidades sob a forma de interação dos *fingers* (Figuras 3.9 e 3.10).

Observa-se nos mapas espaço-temporais que a frente ascendente para $D = 0,1$ é mais instável do que para $D = 0,9$, mas não apresenta desaparecimentos e surgimentos de novos *fingers*. Isso se deve possivelmente as forças ascensionais que são suficientemente fortes para reter essa característica. O que não acontece com a frente descendente, que para $D = 0,1$ apresenta essa dinâmica de surgimentos e desaparecimentos ao longo do tempo. Além disso, os mapas espaço-temporais da frente descendente apresentam pequenas perturbações que diminuem conforme aumenta-se o valor de D tendendo a estabilidade do sistema quando $D > 0,3$.

No caso da frente ascendente, o comprimento de onda pequeno e a convecção são as possíveis propriedades responsáveis pela instabilidade do sistema para $D < 1$. Para as frentes descendentes, o surgimento de pequenas instabilidades nos mapas espaço-temporais quando $D > 0,4$, indica a “quebra” dos *fingers* em vários outros de menor tamanho tendendo o padrão à uma interface planar.

Os resultados do cálculo do espectro de potência (Figura 3.11) mostram que para as frentes ascendentes não se pode determinar um grau de desordem espacial, enquanto que para as frentes descendentes é possível observar vários picos quando $D = 0,1$ sendo um pico maior em $k \approx 0,1$. Além disso, um espalhamento da energia espectral para os outros modos é observado conforme D diminui.

Segundo o cálculo da entropia espectral (Figura 3.12) as instabilidades da frente ascendente apresentam um valor de entropia máximo ($\langle S_t \rangle \approx 1,7$) menor que para a frente descendente ($\langle S_t \rangle \approx 2,7$), e também menor que para a instabilidade puramente difusiva ($\langle S_t \rangle \approx 1,8$). Estas frentes também permanecem em estado desordenado quando $D > 1$, ao contrário das frentes descendentes que ficam em

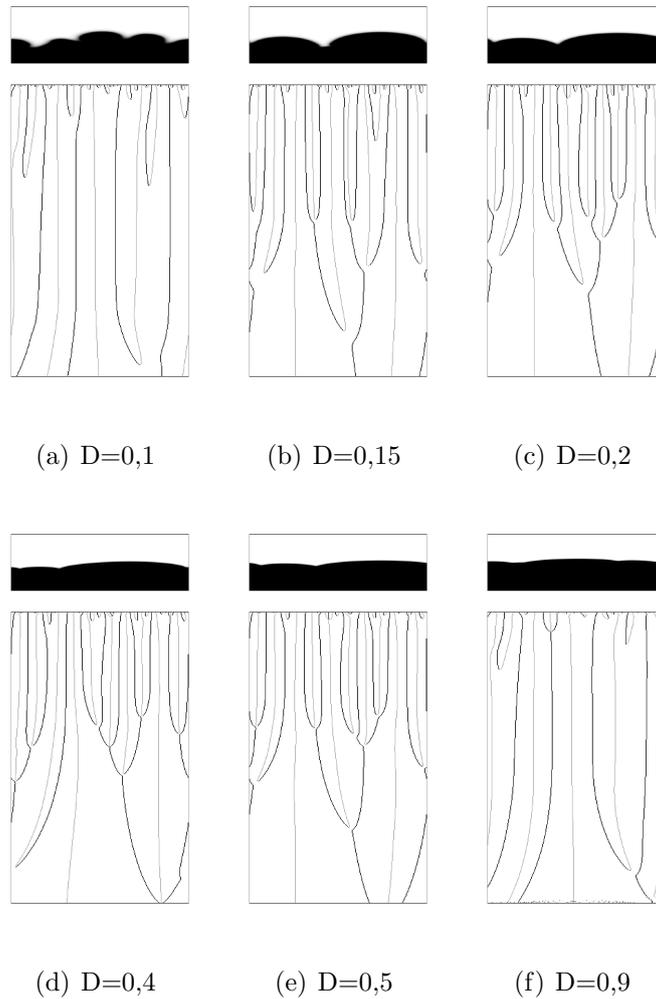


Figura 3.9 - Mapas espaço-temporais das posições de máximo (linhas pretas) e mínimo (linhas cinza) do perfil de concentração média longitudinal em função do tempo quando a densidade diminui durante a reação para diferentes valores de D considerando as frentes ascendentes de A variando de $t = 0$ a $t = 5600$. No topo dos mapas, apresenta-se as matrizes de concentração de A no tempo $t = 5000$.

estado ordenado quando $D \geq 0,3$. Isto deve-se a propriedade de coalescência dos *fingers* que pode ser observada nos mapas espaço-temporais.

No caso das frentes descendentes, estas apresentam três intervalos de valores de $\langle S_t \rangle$ predominantes: $\langle S_t \rangle > 2,5$ para $0,1 < D < 0,2$, $0,5 < \langle S_t \rangle < 2$ para $0,2 < D < 0,25$ e $\langle S_t \rangle = 0$ para $D > 0,25$. Esse comportamento indica que existem três diferentes tipos de dinâmica da frente de propagação. Comparando com a dinâmica observada nos mapas espaço-temporais, no primeiro intervalo de

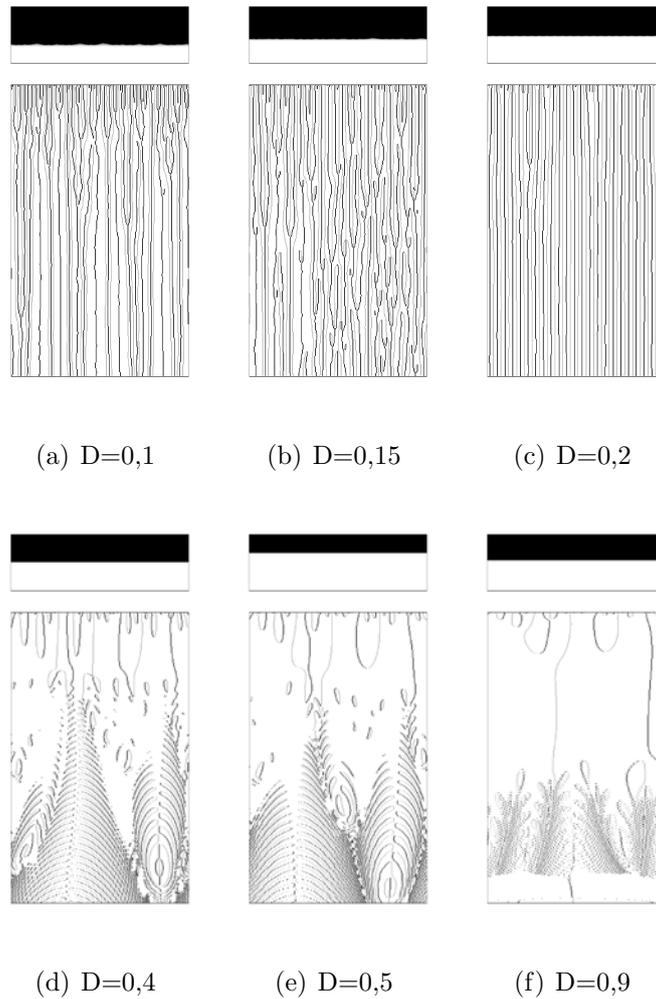


Figura 3.10 - Mapas espaço-temporais das posições de máximo (linhas pretas) e mínimo (linhas cinza) do perfil de concentração média longitudinal em função do tempo quando a densidade diminui durante a reação para diferentes valores de D considerando as frentes descendentes de A variando de $t = 0$ a $t = 5600$. No topo dos mapas, apresenta-se as matrizes de concentração de A no tempo $t = 5000$.

$\langle S_t \rangle$, observa-se que ocorre mais desordenadamente o surgimento e desaparecimento de *fingers*. Para o segundo intervalo de $\langle S_t \rangle$ essa dinâmica ocorre em poucos momentos da evolução temporal do sistema. Para o terceiro intervalo de $\langle S_t \rangle$, a dinâmica de propagação da frente é dominada por quebras de *fingers* em outros ainda menores, não se sobressaindo nenhum *finger*, e dessa forma tendendo a uma interface plana.

Como sabemos que no caso das instabilidades puramente difusivas, os valores de

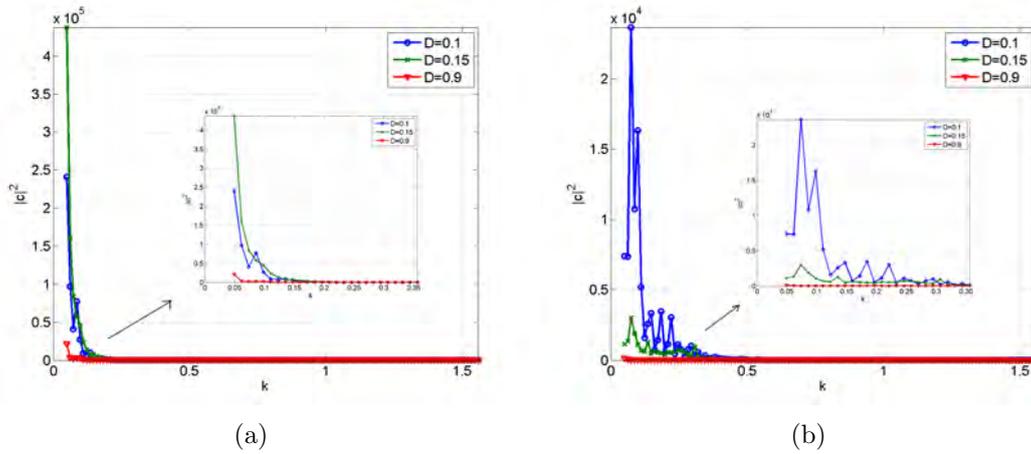


Figura 3.11 - Média temporal do espectro de potência para (a) a frente ascendente e para (b) a frente descendente do reagente A quando $R_a > R_b$.

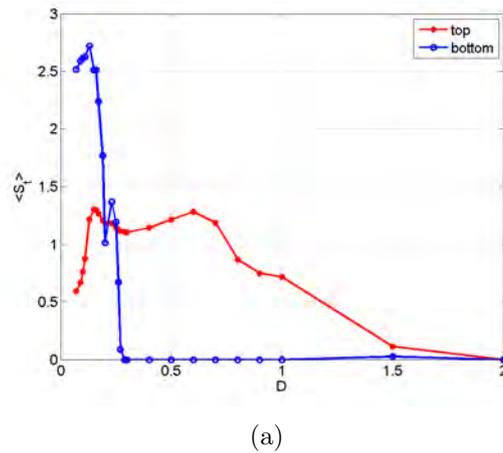


Figura 3.12 - Média temporal da entropia espectral da frente ascendente (curva vermelha) e da frente descendente (curva azul) do reagente A quando $R_a > R_b$.

entropia espectral estão em torno de 1,8, podemos dizer que instabilidades difusivas são predominantes para o sistema quando $D < 0,2$ para a frente descendente, condizendo com o observado pela Análise de Estabilidade Linear (D'HERNONCOURT et al., 2007; D'HERNONCOURT et al., 2009a) e nos mapas espaço-temporais. Quando $D > 0,2$ para as frentes descendentes e $D < 0,6$ para as frentes ascendentes podemos dizer que a desordem espacial é causada pela predominância de instabilidades do tipo RT. A tendência ao estado ordenado do sistema após esses valores de D , para ambas as frentes, mostra que a coalescência ou fragmentação dos *fingers* torna

a frente quase planar.

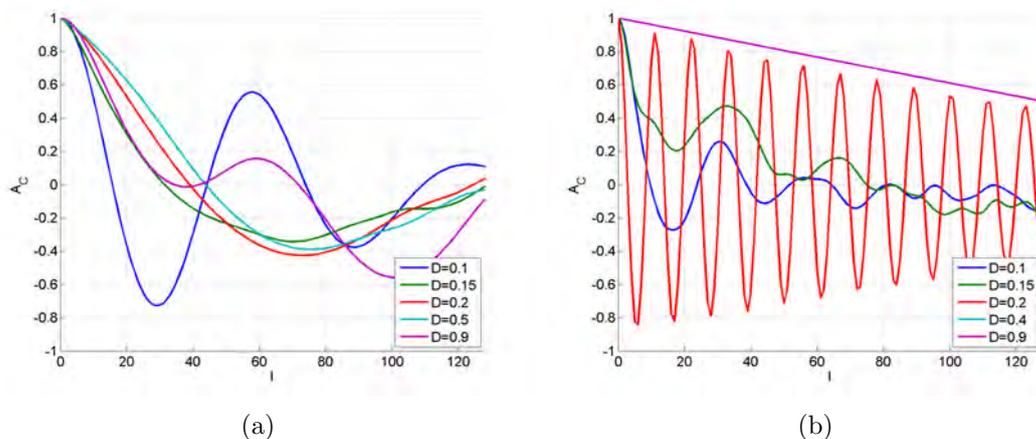


Figura 3.13 - Cálculo da função de autocorrelação da (a) frente ascendente e da (b) frente descendente do reagente A quando $R_a > R_b$.

A função de autocorrelação espacial (Figura 3.13) mostra que para as frentes ascendentes não existe uma periodicidade característica do sistema, mas no caso das frentes descendentes, a periodicidade é evidente quando $D \approx 0,2$. Este resultado indica características parecidas para o sistema quando a instabilidade puramente difusiva predomina e quando o valor de D é próximo ao valor crítico D_c . Além disso, o valor de $\langle S_t \rangle$ para os dois tipos de sistema ($R_a = R_b = 0$ e $R_a > R_b$), quando essa característica de periodicidade ocorre, são equivalentes ($\langle S_t \rangle \approx 1$). Logo, não se caracteriza uma dinâmica complexa visto que, o maior valor de $\langle S_t \rangle$ (ou seja o maior grau de desordem espacial) para a instabilidade puramente difusiva acontece quando $D \approx 0,15$ ($\langle S_t \rangle = 1,8$).

3.3.3 Densidade aumenta durante a reação: $R_a < R_b$

Pela Análise de Estabilidade Linear sabe-se que neste caso, sendo agora o produto B mais pesado que o reagente A , a frente ascendente (Figura 3.14) é ascensionalmente estável enquanto que as frentes descendentes (Figura 3.15) apresentam instabilidades do tipo RT (D'HERNONCOURT et al., 2007; D'HERNONCOURT et al., 2009a).

A Análise de Estabilidade Linear para as frentes ascendentes apresentam razões de crescimento negativas mostrando que a desestabilização da frente descendente ocorre

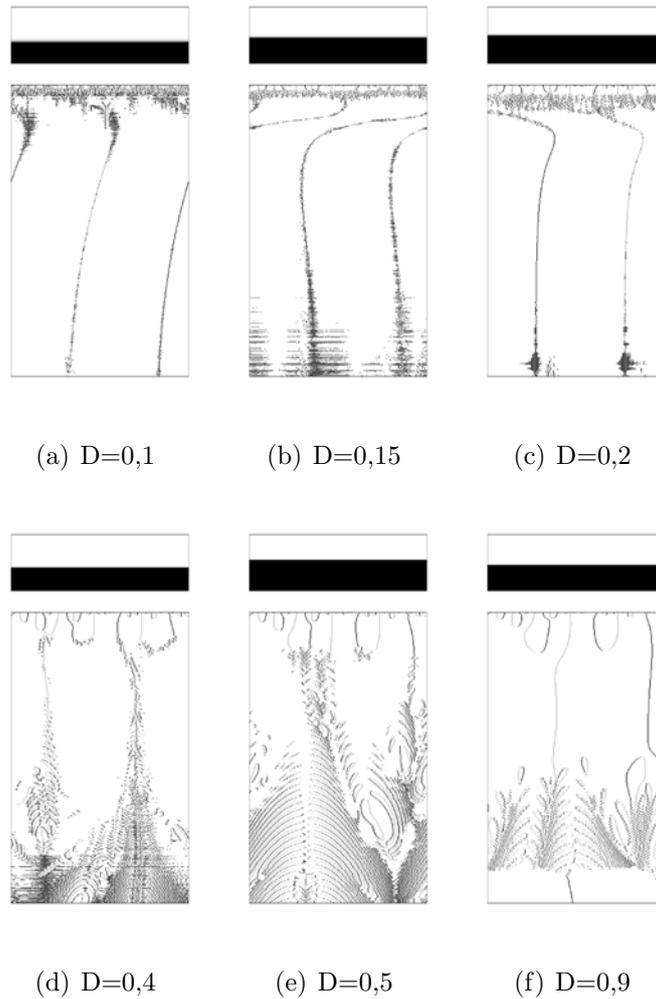


Figura 3.14 - Mapas espaço-temporais das posições de máximo (linhas pretas) e mínimo (linhas cinza) do perfil de concentração média longitudinal em função do tempo quando a densidade aumenta durante a reação para diferentes valores de D considerando as frentes ascendentes de A variando de $t = 0$ a $t = 5600$. No topo dos mapas, apresenta-se as matrizes de concentração de A no tempo $t = 5000$.

devido a dispersão difusiva. A interação entre os dois tipos de instabilidades resulta em uma dinâmica complexa que pode ser observada nos mapas espaço-temporais da Figura 3.15.

O comprimento de onda das perturbações da frente descendente aumenta conforme D diminui, possivelmente devido as instabilidades difusivas. Este comportamento está caracterizado no mapa espaço-temporal quando $D = 0,15$. As estruturas de pequena escala (perturbações decorrentes da instabilidade difusiva) nos *fingers* maiores

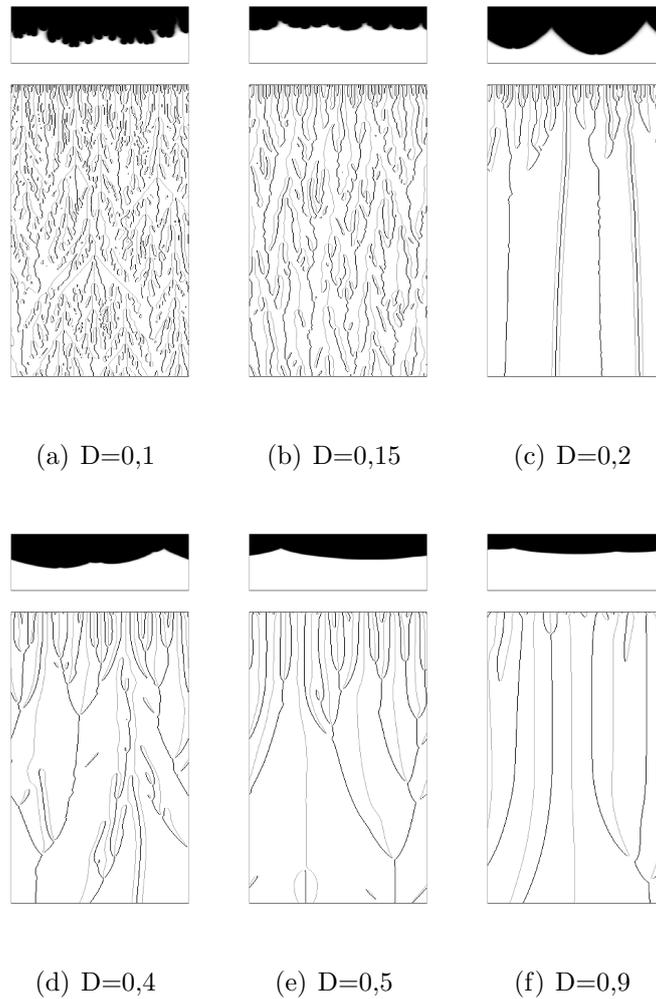


Figura 3.15 - Mapas espaço-temporais das posições de máximo (linhas pretas) e mínimo (linhas cinza) do perfil de concentração média longitudinal em função do tempo quando a densidade aumenta durante a reação para diferentes valores de D considerando as frentes descendentes de A variando de $t = 0$ a $t = 5600$. No topo dos mapas, apresenta-se as matrizes de concentração de A no tempo $t = 5000$.

(instabilidade de RT) são observadas nos mapas espaço-temporais para $D = 0,2$. Com o aumento de D , as escalas de comprimento da frente de propagação são quase planares (veja mapa espaço-temporal quando $D = 0,9$) quando comparadas as escalas de comprimento associadas a instabilidade difusiva.

O cálculo do espectro de potência (Figura 3.16) mostra que não existe desordem espacial para as frentes ascendentes, conforme esperado, e que para as frentes descendentes um pico em $k \approx 0,01$ ocorre quando $D = 0,2$. A tendência de espalhamento

da energia espectral é observada conforme o valor de D diminui. Se D aumenta, não há a presença de nenhum pico no espectro indicando a tendência para um estado ordenado.

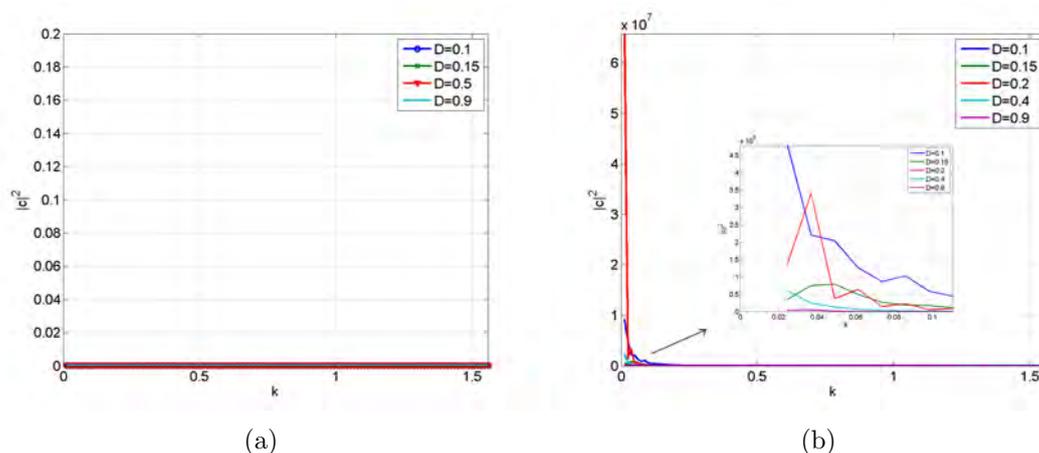


Figura 3.16 - Média temporal do espectro de potência para (a) a frente ascendente e para (b) a frente descendente do reagente A quando $R_a < R_b$.

Segundo o cálculo da entropia espectral para este caso (Figura 3.17), a frente ascendente observada do reagente A é estável (sem desordem espacial). O valor mais alto de desordem espacial para as frentes descendentes é obtido quando $D \approx 0,2$. Possivelmente, este comportamento deve-se a influência das instabilidades puramente difusivas discutidas na seção anterior. Essas instabilidades são as pequenas perturbações durante a evolução dos *fingers*, como pode ser visto nos mapas espaço-temporais do sistema quando $D = 0,2$ e $D = 0,4$. Além disso, para as frentes descendentes, é possível observar três comportamentos de desordem espacial: $\langle S(t) \rangle > 2$ para $0,1 < D < 0,2$, $1 < \langle S(t) \rangle < 0,5$ para $0,2 < D < 0,6$, e $\langle S(t) \rangle \rightarrow 0$ para $D > 0,6$.

Como sabemos que no caso das instabilidades puramente difusivas os valores de entropia espectral são maiores ou iguais a 1,8, podemos dizer também que neste caso as instabilidades difusivas são predominantes para o sistema quando $D < 0,2$ para a frente descendente. Quando $D > 0,2$, podemos dizer que a interação entre as instabilidades difusivas e de RT causam a desordem espacial, sendo as de RT predominantes quando $D \approx 0,7$. Quando $D > 0,7$ não há nenhuma pequena estrutura,

que possa causar perturbação no sistema, e a frente é quase planar resultando no valor da entropia espectral tendendo a zero.

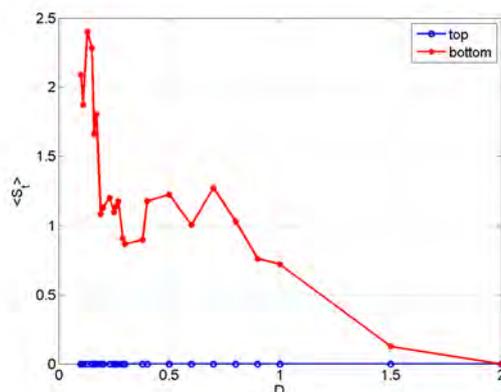


Figura 3.17 - Média temporal da entropia espectral da frente ascendente (curva vermelha) e da frente descendente (curva azul) do reagente A .

A função de autocorrelação espacial mostra que, como esperado, para as frentes ascendentes não há nenhum tipo de correlação (Figura 3.18(a)). Para as frentes descendentes, não se pode dizer que o sistema apresenta algum caráter periódico, mas quando $D = 0, 1$ a função de autocorrelação apresenta variação suave e tende a zero (Figura 3.18(b)).

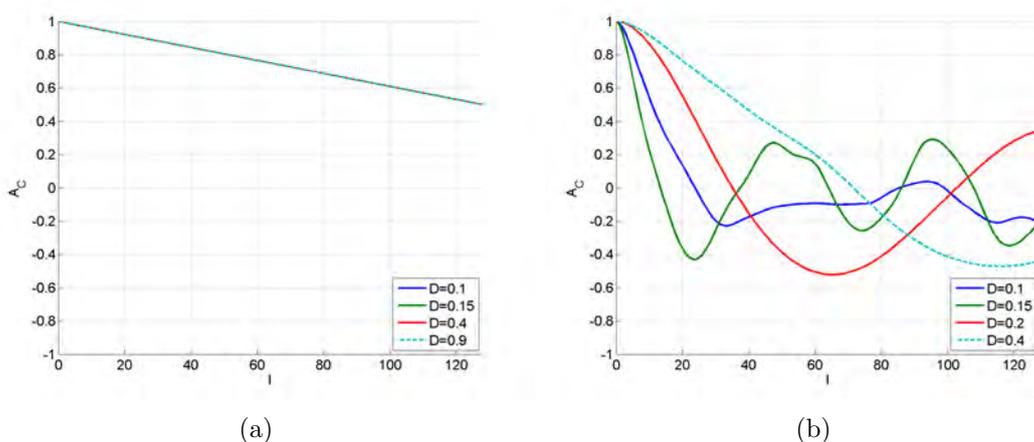


Figura 3.18 - Cálculo da função de autocorrelação da (a) frente ascendente e da (b) frente descendente do reagente A quando $R_a < R_b$.

3.4 Síntese dos Resultados

Nesta parte do trabalho mostra-se que a análise espectral (especialmente o cálculo da entropia espectral) é capaz de caracterizar a dinâmica complexa presente em frentes de propagação instáveis. A entropia espectral é capaz de quantificar e identificar a transição para uma dinâmica que pode ser considerada como evidência de caos espaço-temporal, quando instabilidades de RT e difusiva estão presentes e interagem (BARONI; DE WIT, 2008).

Tanto o espectro de potência como a entropia espectral mostram valores de desordem espacial altos quando $D < D_c$. Em particular, quando $R_b > R_a$ para as frentes descendentes observa-se nos mapas espaço-temporais um comportamento complexo das frentes, sendo que a entropia espectral apresenta valores mais altos do que o sistema para $R_a = R_b = 0$.

A Figura 3.19 apresenta um resumo dos resultados para a entropia espectral para ambas as frentes. Neste caso é possível observar que as frentes ascendentes apresentam valores menores de $\langle S_t \rangle$ para $R_a > R_b$ do que para $R_a = R_b = 0$. Esse resultado indica que apesar da instabilidade de RT fazer com que o sistema apresente um caráter desordenado, essa desordem não é tão alta quando comparada com sistema desordenado causado pela instabilidade puramente difusiva, que sabidamente apresenta caos espaço-temporal na forma de *biscala chaos* (MALEVNETS et al., 1995).

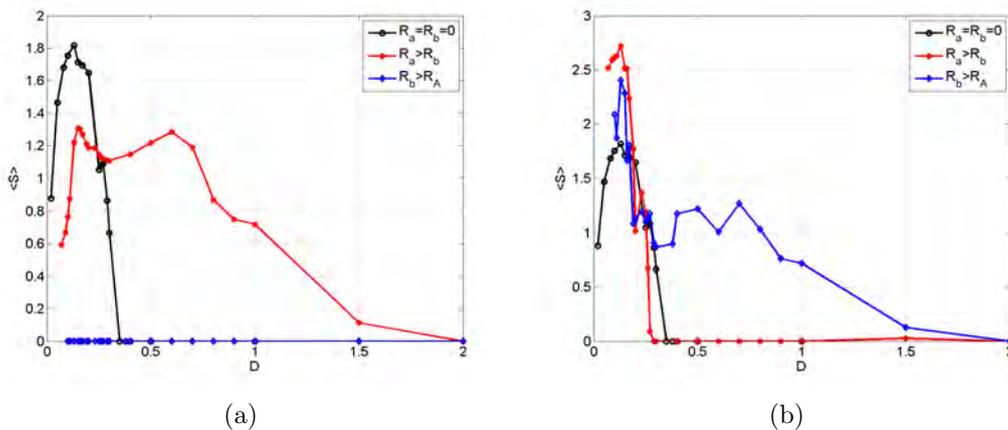


Figura 3.19 - Comparação do cálculo da entropia espectral para os três casos estudados considerando (a) as frentes ascendentes e (b) as frentes descendentes.

Para as frentes descendentes (Figura 3.19(b)) os valores de $\langle S_t \rangle$ maiores do que para a instabilidade puramente difusiva indicam que a interação entre as instabilidade de RT e difusiva apresentam uma característica de desordem espacial mais desenvolvida. Entretanto, quando o sistema atinge predominantemente características de instabilidades de RT (para o caso $R_a < R_b$ quando $D > 0,3$), este valor de desordem decai e tanto para a entropia espectral quanto para os mapas espaço-temporais é possível observar características físicas equivalentes (*fingers* e coalescência de *fingers*) com a frente ascendente quando $R_a > R_b$ quando $D > 0,25$. Este resultado inédito torna evidente a importância da instabilidade difusiva na dinâmica complexa dessa frente de propagação. Além disso, pode-se dizer que esse sistema, considerando os valores da entropia espectral, apresenta comportamento compatível com caos espaço-temporal.

4 CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS

De forma geral, este trabalho apresentou análises inéditas de padrões de *fingering* em simulações de sistemas que apresentam instabilidades hidrodinâmicas. Esses padrões foram gerados em sistemas sem e com influência de reações químicas. O sistema permitiu abordar características específicas tais como extensão do fenômeno, número de onda e a evolução das assimetrias.

Na primeira parte do trabalho estudou-se comparativamente os padrões de *fingering* gerados pelas instabilidades DF e VF, principalmente no regime não-linear das simulações. O sistema utilizado é um sistema de dois elementos onde a interface entre eles sofre deformações devido a variações de densidade ou de viscosidade. A análise dos resultados foi feita utilizando medidas quantitativas clássicas e a GPA. Neste caso mostrou-se que a GPA é uma técnica capaz de diagnosticar mudanças nas assimetrias bilaterais de perfis de concentração de VF e DF tanto no regime linear quanto no regime não-linear através do cálculo do coeficiente de assimetria gradiente. Além disso, a análise dos dados com a GPA fornece uma nova medida estrutural (assimetria bilateral) não caracterizada em detalhes pela medidas usuais (comprimento de mistura e número de onda médio). Dessa forma, essa ferramenta constitui uma nova medida quantitativa na análise de padrões de *fingering* sendo capaz de observar a evolução das assimetrias dos perfis de concentração média.

Adicionalmente, este trabalho contribui para a área de hidrodinâmica, em que os resultados identificam as similaridades entre VF e DF, antes constatadas apenas pela Análise de Estabilidade Linear, identificando o momento em que essa equivalência ocorre no regime não-linear das simulações. De forma inédita, apresentou-se um estudo comparativo que evidencia diferenças finas entre os padrões estruturais de VF e DF principalmente como função dos parâmetros R e R_a .

Com relação a aplicação na área espacial, pela primeira vez avaliaram-se padrões de *fingering* para diferentes valores de aceleração da gravidade escolhidos de acordo com os diferentes planetas do Sistema Solar, incluindo a gravidade lunar. Os padrões de *fingering* foram mais evoluídos a partir das simulações para valores de g maiores que a gravidade terrestre. Além disso, para corpos com essa constante maior que duas vezes a da Terra, as assimetrias entre os *fingers* são muito maiores, indicando um comportamento de deslocamento da interface mais dispersivo e com *fingers* de diferentes extensões. Espera-se que esses resultados sejam relevantes para futuros

experimentos programados em missões espaciais.

Na segunda parte do trabalho, estudou-se a transição para uma dinâmica complexa que ocorre do acoplamento de dois tipos de instabilidades: a instabilidade de RT e a instabilidade difusiva. Foi utilizado um sistema de três elementos separados por duas interfaces que sofrem deformações devido as instabilidades de diferentes maneiras, dependendo da variação de densidade dos elementos envolvidos. Para a identificação dessa transição utilizou-se especialmente ferramentas da análise espectral. Em particular, o cálculo da entropia espectral aplicada aos perfis de concentração média longitudinal das frentes de propagação é capaz de quantificar uma transição de um estado ordenado para um estado desordenado do sistema. Para o caso de instabilidades puramente difusiva ($R_a = R_b = 0$), o resultado obtido foi coerente com o esperado para o caso em que ocorre aumento da razão de difusão, e também do valor crítico dessa razão, ou seja, quando não há instabilidades e o resultado é um estado ordenado (um frente de propagação plana). Para os casos de variação de densidade ($R_a > R_b$ e $R_a < R_b$) a análise identificou a transição do sistema para uma dinâmica complexa, em especial a entropia espectral, foi capaz de quantificar as características de cada instabilidade e relacioná-las. Como sabe-se que para o caso de instabilidade puramente difusiva ($R_a = R_b = 0$) o sistema tem características de caos espaço-temporal (MALEVANETS et al., 1995), a entropia espectral, nesse aspecto, identificou essa transição. Pode-se dizer que para os outros casos ($R_a > R_b$ $R_a < R_b$) essa característica também foi encontrada.

Adicionalmente, nesse estudo comparativo entre as frentes de propagação submetidas a variação de densidade, mostrou-se pela primeira vez que a transição para uma dinâmica complexa caracterizada como caos espaço-temporal depende prioritariamente da interação entre as duas instabilidades (RT e difusiva), sendo a instabilidade difusiva aquela que proporciona maior desordem espacial.

De um ponto de vista da hidrodinâmica, os resultados desse trabalho contribuem com a análise da evolução de padrões visualmente equivalentes mas que apresentam pequenas diferenças estruturais que não podem ser observadas apenas por inspeção visual, dependendo de medidas estruturais realizadas com ferramentas computacionais apropriadas. Outra contribuição é a identificação da instabilidade difusiva como grande responsável pela transição para o caos espaço-temporal dos padrões de *fingering*.

De um ponto de vista computacional, esse trabalho contribui com novas aplicações para as ferramentas já conhecidas, e de um novo caracterizador para padrões de *fingering*: o coeficiente de assimetria gradiente. Além disso, com relação as assimetrias de um sistema, a medida de razão de aspecto de assimetria pode ser um novo caracterizador de persistência de séries espaço-temporais. Com relação a análise de sistemas reativos-advectivos-difusivos, esse trabalho contribui com novas ferramentas de caracterização de processos não-lineares onde a complexidade estrutural apresenta dependência direta da escolha de parâmetros físicos constitutivos.

Este trabalho e suas ferramentas de caracterização trazem como perspectiva futura o estudo e caracterização da percolação de fluidos ferro-magnéticos em uma fenda revestida por material poroso (por exemplo, o silício poroso), como exemplificado na Figura 4.1. Onde se espera que as instabilidades estudadas nesse trabalho possam surgir dentro de um aparato mais complexo. Nesse caso, é possível investigar a influência da birrefringência¹ causada pelo ferro-fluído sobre a luz emitida pelo silício poroso devido a sua propriedade de fotoluminescência².

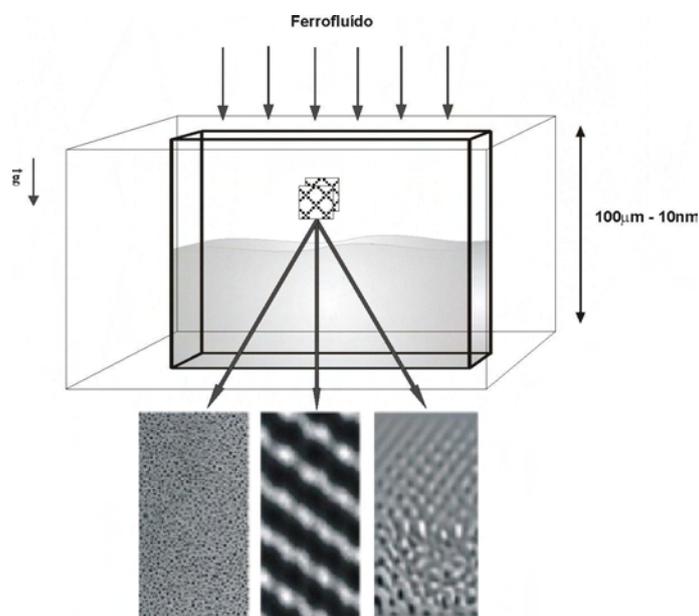


Figura 4.1 - Exemplo de um dispositivo de injeção de ferro-fluído em uma fenda revestida com material poroso. Exemplos de porosidade das paredes internas da fenda pode ser visto no detalhe da Figura.

¹A birrefringência é a formação de dupla refração apresentada por certos cristais intimamente ligada com a velocidade e direção de propagação da luz.

²A parcela da luz incidente que é absorvida pelo material pode excitar seus átomos, aumentando a sua energia interna, resultando em uma energia que será emitida pelo material (PRÄSS, 1997).

Outra perspectiva é a análise dos sistemas reativos-difusivos-advectivos para escalas espaciais e temporais maiores, onde a partir de uma série temporal obtida da diferença entre um ponto do perfil de concentração média longitudinal e a média temporal desse perfil, pode-se caracterizar o sistema e identificar possíveis pontos atratores no gráfico de primeiro retorno (veja Figura 4.2).

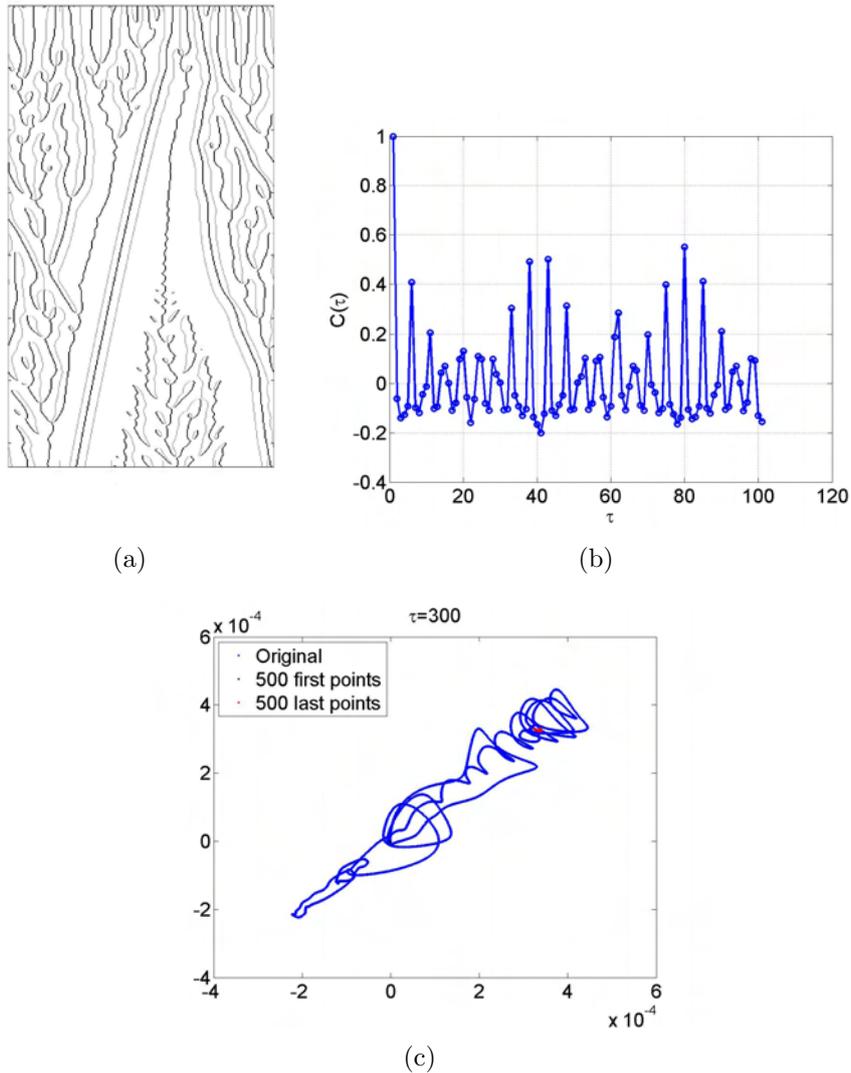


Figura 4.2 - Exemplo de sistema com tamanho 32768×512 (grid 16384×256) onde atuam três elementos (A-B-A) considerando $R_A = R_B = 0$. É possível observar no (a) mapa espaço-temporal que de forma imprevisível, existe o surgimento e desaparecimento de *fingers*. (b) O cálculo da função de autocorrelação espacial desse sistema mostra característica de periodicidade, onde pode-se dizer que existe a predominância de dois períodos principais. (c) O gráfico de primeiro retorno indica um possível atrator.

Em síntese, o trabalho de pesquisa desenvolvido abordou simulações inéditas de padrões de *fingering* que foram analisados pela primeira vez de forma detalhada, resultando na caracterização de novas propriedades da dinâmica de *fingering* como assimetria bilateral e caos espaço-temporal. Espera-se que tais propriedades sejam úteis na validação de modelos com maior detalhamento e na aplicação da teoria de fluidos e reações miscíveis com interface, muito importante por exemplo, para a ciência e tecnologia do petróleo e sua relação com o meio ambiente.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ARAÚJO, L. **A triangulação de Delaunay**. [S.l.], 2009. Disponível em: <<http://www.cefala.org/~leoca/delaunay/92.html>>. Acesso em: 26 mar. 2009. 47
- AREF, H.; TRYGGVASON, G. Model of rayleigh-taylor instability. **Physical Review Letters**, v. 62, n. 7, p. 749–752, Feb. 1989. 50
- ASSIREU, A. T.; ROSA, R. R.; VIJAYKUMAR, N. L.; LORENZZETTI, J. A.; REMPEL, E. L.; RAMOS, F. M.; SÁ, L. D. A.; BOLZAN, M. J. A.; ZANANDREA, A. Gradient pattern analysis of short nonstationary time series: an application to lagrangian data from satellite tracked drifters. **Physica D - Nonlinear Phenomena**, v. 168, n. 1, p. 397–403, Aug. 2002. 43, 44
- BÁNSÁGI, J. T.; HORVÁTH, D.; TÓTH, A. Multicomponent convection in the chlorite-tetrathionate reaction. **Chemical Physics Letters**, v. 384, n. 1-3, p. 153–156, Jan. 2004. 80
- BARABÁSI, A. L.; STANLEY, H. E. **Fractal concepts in surface growth**. Cambridge: Cambridge University Press, 1995. 366 p. 23, 113, 114, 115
- BARONI, M. P. M. A. **Análise matemático-computacional de superfícies irregulares: aplicações para materiais ativos nanoestruturados**. 185 p. Dissertação (Mestrado em Computação Aplicada) — Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais, São José dos Campos, 2005. 48, 113
- BARONI, M. P. M. A.; DE WIT, A. Spatiotemporal chaos in the dynamics of buoyantly unstable chemical fronts. In: AMERICAN PHYSICAL SOCIETY, 61., 2008, San Antonio, Texas. **Bulletin of the American Physical Society**. San Antonio, Texas, 2008. v. 53, n. 15, p. LV.001. 93
- BARONI, M. P. M. A.; ROSA, R. R.; DE WIT, A. Properties of fingering patterns measured by gradient pattern analysis. In: BELGIAN PHYSICAL SOCIETY, 2008, Université Libre de Bruxelles, Bélgica. **Belgian Physical Society: General Scientific Meeting**. Bruxelas: Belgian Physical Society, 2008. 71
- BARONI, M. P. M. A.; ROSA, R. R.; FERREIRA DA SILVA, A.; PEPE, I.; ROMAN, L.; RAMOS, F.; AHUJA, R.; PERSSON, C.; VEJE, E. Modeling and

gradient pattern analysis of irregular sfm structures of porous silicon.

Microelectronics Journal, v. 37, n. 4, p. 290–294, 2006. [43](#)

BATCHELOR, M. T.; HENRY, B. I.; WATT, S. D. Continuum model for radial interface growth. **Physica A**, v. 260, n. 1-2, p. 11–19, Nov. 1998. [113](#)

BÖCKMANN, M.; MÜLLER, S. C. Growth rates of the buoyancy-driven instability of an autocatalytic reaction front in a narrow cell. **Physical Review Letters**, v. 85, n. 12, p. 2506–2509, Sep. 2000. [80](#)

_____. Coarsening in the buoyancy-driven instability of a reaction-diffusion front. **Physical Review E**, v. 70, n. 4, p. 046302, Oct. 2004. [80](#)

BOUSSINESQ, J. V. **Théorie analytique de la chaleur**. Paris: Gauthier-Villars, 1903. 362 p. [75](#)

BRUYN, J. R. de. Fingering instability of gravity currents in thin-layer electrochemical deposition. **Physical Review Letters**, v. 74, n. 24, p. 4843–4846, Jun. 1995. [24](#)

CAKMUR, R. V.; EGOLF, D. A.; PLAPP, B. B.; BODENSCHATZ, E. Bistability and competition of spatiotemporal chaotic and fixed point attractors in rayleigh-bénard convection. **Physical Review Letters**, v. 79, n. 10, p. 1853–1856, Sept. 1997. [79](#)

CHANDRASEKHAR, S. **Hydrodynamic and hydromagnetic stability**. [S.l.]: Clarendon Press, 1961. 652 p. [24](#)

CHOUKE, R. L.; VAN MEURS, P.; POEL, C. van der. The instability of slow, immiscible, viscous liquid-liquid displacements in permeable media. **Trans. AIME**, v. 216, p. 188–194, Jan. 1959. [25](#)

DARCY, H. **Les fontaines publiques de la ville de Dijon**. Paris: V. Dalmont, Paris, 1856. 647 p. [27](#)

DE WIT, A. Fingering of chemical fronts in porous media. **Physical Review Letters**, v. 87, n. 5, p. 54502–1–54502–4, July 2001. [52](#), [119](#)

_____. Miscible density fingering of chemical fronts in porous media: Nonlinear simulations. **Physics of fluids**, v. 16, n. 1, p. 163–175, Jan. 2004. [26](#), [34](#), [39](#)

DE WIT, A. **Fingering of chemical fronts**. 186 p. Tese (Grade d'Agrégée de l'Enseignement Supérieur de la Faculté des Sciences de l'Université Libre de Bruxelles.) — Université Libre de Bruxelles, Bruxelles, 2007. [23](#), [28](#), [76](#)

DE WIT, A.; BERTHO, Y.; MARTIN, M. Viscous fingering of miscible slices. **Physics of fluids**, v. 17, n. 054114, p. 054114–1–054114–9, May 2005. [48](#)

DE WIT, A.; HOMSY, G. M. Viscous fingering in reaction-diffusion systems. **Journal of Chemical Physics**, v. 110, n. 17, p. 8663, May 1999. E referências. [24](#)

D'HERNONCOURT, J. **Influence of thermal effects and electric fields on fingering of chemical fronts: a theoretical study**. 188 p. Tese (Sciences PhD) — Université Libre de Bruxelles, Bruxelles, 2007. [28](#), [29](#), [42](#), [80](#), [121](#)

D'HERNONCOURT, J.; MERKIN, J. H.; DE WIT, A. Front fingering and complex dynamics driven by the interaction of buoyancy and diffusive instabilities. **Physical Review E**, v. 70, n. 3, p. 035301(R), Sep. 2007. [27](#), [29](#), [74](#), [75](#), [76](#), [81](#), [84](#), [87](#), [88](#)

_____. Interaction between buoyancy and diffusion-driven instabilities of propagating autocatalytic reaction fronts. i. linear stability analysis. **Journal of Chemical Physics**, v. 130, n. 11, p. 114502–1–114502–13, Mar. 2009. [84](#), [87](#), [88](#), [121](#)

_____. Interaction between buoyancy and diffusion-driven instabilities of propagating autocatalytic reaction fronts. i. nonlinear simulations. **Journal of Chemical Physics**, v. 130, n. 11, p. 114503–1–114503–10, Mar. 2009. [76](#)

D'HERNONCOURT, J.; ZEBIB, A.; DE WIT, A. On the classification of buoyancy-driven chemo-hydrodynamic instabilities of chemical fronts. **Chaos**, v. 17, n. 1, p. 013109, Mar. 2007. [80](#)

ECKERT, K.; GRAHN, A. Plume and finger regimes driven by an exothermic interfacial reaction. **Physical Review Letters**, v. 82, n. 22, p. 4436–4439, May 1999. [24](#)

ELEZGARAY, J.; LEGER, C.; ARGOUL, F. Dense branching morphology in electrodeposition experiments: Characterization and mean-field modeling. **Physical Review Letters**, v. 84, n. 14, p. 3129–3132, Apr. 2000. [24](#)

ESTEVEVES, M.; CARDOSO, M.; BARCIA, O. E. A debye-huckel model for calculating the viscosity of binary strong electrolytic solutions. **Ind. Eng. Chem. Res.**, v. 40, n. 22, p. 5021–5028, Oct. 2001. [36](#)

FERNANDEZ, J.; KUROWSKI, P.; PETITJEANS, P.; MEIBURG, E. Density-driven unstable flows of miscible fluids in a hele-shaw cell. **Journal of Fluid Mechanics**, v. 451, n. 1, p. 239–260, Jan. 2002. [25](#), [33](#)

FRIGO, M.; JOHNSON, S. G. **FFTW home page**. [S.l.], 1999. Disponível em: <http://www.fftw.org/>. Acesso em: 18 mar. 2009. [112](#)

HILL, S. Channeling in packed columns. **Chemical Engineering Science**, v. 1, n. 6, p. 247–253, Dec. 1952. [24](#)

HOMSY, G. M. Viscous fingering in porous media. **Ann. Rev. Fluid Mech.**, v. 19, n. 1, p. 271–311, Jan. 1987. [23](#), [24](#), [25](#), [28](#), [29](#), [34](#), [39](#)

HORVÁTH, D.; BÁNSÁGI, T.; TÓTH, A. Orientation-dependent density fingering in an acidity front. **Journal of Chemical Physics**, v. 117, n. 9, p. 4399–4402, Sep. 2002. [80](#)

HORVÁTH, D.; PETROV, V.; SCOTT, S. K.; SHOWALTER, K. Instabilities in propagating reaction-diffusion fronts. **Journal of Chemical Physics**, v. 98, n. 8, p. 6332–6343, Apr. 1993. [27](#), [76](#), [80](#), [81](#)

HORVÁTH, D.; SHOWALTER, K. Instabilities in propagating reaction-diffusion fronts of the iodate-arsenous acid reaction. **Journal of Chemical Physics**, v. 102, n. 6, p. 2471–2478, Feb. 1995. [80](#)

KARDAR, M.; PARISI, G.; ZHANG, Y.-C. Dynamic scaling of growing interfaces. **Physical Review Letters**, v. 56, n. 9, p. 889–892, Mar. 1986. [113](#)

LEWIS, D. J. The instability of liquid surfaces when accelerated in a direction perpendicular to their planes. ii. **Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences**, v. 202, n. 1065, p. 81–86, Mar. 1950. [25](#)

MALAMUD, B. D.; TURCOTTE, D. L. Self-affine time series: measures of weak and strong persistence. **Journal of Statistical Planning and Inference**, v. 80, n. 1, p. 173–196, Aug. 1999. [56](#)

MALEVANETS, A.; CARETA, A.; KAPRAL, R. Biscala chaos in propagating fronts. **Physical Review E**, v. 52, n. 5, p. 4724–4735, Nov. 1995. [27](#), [31](#), [74](#), [76](#), [80](#), [81](#), [82](#), [93](#), [96](#)

MANICKAM, O.; HOMSY, G. M. Fingering instabilities in vertical miscible displacement flows in porous media. **Journal of Fluid Mechanics**, v. 288, p. 75–102, Apr. 1995. [33](#), [34](#), [50](#), [52](#)

MERKIN, J. H.; KISS, I. Z. Dispersion curves in the diffusional instability of autocatalytic reaction fronts. **Physical Review E**, v. 72, n. 2, p. 026219, Aug. 2005. [27](#), [42](#), [76](#), [120](#)

NAGATSU, Y.; HOSOKAWA, Y.; KATO, Y.; TADA, Y.; UEDA, T. Miscible displacements with chemical reaction in a capillary tube. **AIChE Journal**, v. 54, n. 3, p. 601–613, Mar. 2008. [24](#)

NAGATSU, Y.; MATSUDA, K.; KATO, Y.; TADA, Y. Experimental study on miscible viscous fingering involving changes induced by variations in chemical species concentrations due to chemical reactions. **Journal of Fluid Mechanics**, v. 571, p. 475–493, Jan. 2007. [24](#), [26](#)

NATIONAL AERONAUTICS AND SPACE ADMINISTRATION. **Solar system exploration**. [S.l.], 2006. Disponível em: <http://solarsystem.nasa.gov/planets/profile.cfm?Object=SolarSys>. Acesso em: 18 mar. 2009. [67](#)

NORTON, T.; FERNANDEZ, E. Viscous fingering in size exclusion chromatography: Insights from numerical simulation. **Industrial and Engineering Chemistry Research**, v. 35, n. 7, p. 2460–2468, Jul. 1996. [24](#)

ORTOLEVA, P. J. **Geochemical self-organization**. Oxford: Oxford University Press, 1993. 432 p. [24](#), [26](#)

PENG, C.-K.; BULDYREV, S. V.; HAVLIN, S.; SIMONS, M.; STANLEY, H. E.; GOLDBERGER, A. L. Mosaic organization of dna nucleotides. **Physical Review E**, v. 49, n. 2, p. 1685–1689, Feb. 1994. [56](#)

POWELL, G. E.; PERCIVAL, I. C. A spectral entropy method for distinguishing regular and irregular motion of hamiltonian systems. **Journal of Physics A: Mathematical and General**, v. 12, n. 11, p. 2053–2072, Nov. 1979. [79](#)

PRÄSS, A. R. Mecânica quântica - formas de radiação: emissores de luz. **FisicaNET**, Aug. 1997. Disponível em: <http://www.fisica.net/quantica/curso/formas_de_radiacao_emissores_de_luz.php>. Acesso em: 26 nov 2006. 97

RAMOS, F. M.; ROSA, R. R.; NETO, C. R.; ZANANDREA, A. Generalized complex entropic form for gradient pattern analysis of spatio-temporal dynamics. **Physica A**, v. 283, n. 1-2, p. 171–174, Aug. 2000. 43

RAYLEIGH, L. Investigation of the character of the equilibrium of an incompressible heavy fluid of variable density. **Proceedings of the London Mathematical Society**, v. 14, n. 1, p. 170–177, Apr. 1883. 25

REMPEL, E. L.; CHIAN, A. C.-L.; MIRANDA, R. A. Chaotic saddles at the onset of intermittent spatiotemporal chaos. **Physica Review E**, v. 76, n. 056217, p. 056217–01–056217–06, Nov. 2007. 79

RICA, T.; HORVÁTH, D.; TÓTH, A. Density fingering in acidity fronts: Effect of viscosity. **Chemical Physics Letters**, v. 408, n. 4-6, p. 422–425, Jun. 2005. 80

ROSA, R. R.; BARONI, M. P. M. A.; ZANIBONI, G. T.; FERREIRA DA SILVA, A.; ROMAN, L. S.; PONTES, J.; BOLZAN, M. J. A. Structural complexity of disordered surfaces: Analyzing the porous silicon sfm patterns. **Physica A: Statistical Mechanics and its Applications**, v. 386, n. 2, p. 666–673, Dec. 2007. 43

ROSA, R. R.; CAMPOS, M. R.; RAMOS, F. M.; VIJAYKUMAR, N. L. Gradient pattern analysis of structural dynamics: application to molecular system relaxation. **Brazilian Journal of Physics**, v. 33, n. 3, p. 605–610, Sept. 2003. 43

ROSA, R. R.; SHARMA, A. S.; VALDIVIA, J. A. Characterization of asymmetric fragmentation patterns in spatially extended systems. **International Journal of Modern Physics C**, v. 10, n. 1, p. 147–163, 1999. 43, 45, 47, 48

RUYER-QUIL, C. Inertial corrections to the darcy law in a hele-shaw cell. **Comptes Rendus de l'Academie des Sciences Series IIB Mechanics**, v. 329, n. 5, p. 337–342, May 2001. 28

SAUFFMAN, P. G.; TAYLOR, G. I. The penetration of a fluid into a porous medium or hele-shaw cell containing a more viscous liquid. **Proceedings of the**

Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, v. 245, n. 1242, p. 312–329, Jun. 1958. [25](#)

SHARP, D. An overview of rayleigh-taylor instability. **Physica D: Nonlinear Phenomena**, v. 12, n. 1-3, p. 3–10, July 1984. [24](#)

TAN, C. T.; HOMSY, G. M. Stability of miscible displacements in porous media: Rectilinear flow. **Physics of Fluids**, v. 29, n. 11, p. 3549–3556, Nov. 1986. [29](#), [33](#), [34](#), [52](#), [78](#), [119](#)

_____. Simulation of nonlinear viscous fingering in miscible displacement. **Physics of Fluids**, v. 31, n. 6, p. 1330–1338, Jun. 1988. [33](#), [37](#), [110](#), [112](#)

TAYLOR, G. I. The instability of liquid surfaces when accelerated in a direction perpendicular to their planes. **Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences**, v. 201, n. 1065, p. 192–196, Mar. 1950. [25](#)

TCHELEPI, H. A.; JR, F. M. O.; RAKOTOMALALA, N.; SALIN, D.; WOMENIT, R. Dispersion, permeability heterogeneity and viscous fingering: acoustic experimental observations and particle-tracking simulations. **Physics of fluids A - Fluid Dynamics**, v. 5, n. 7, p. 1558–1574, Jul. 1993. [40](#)

TURNER, J. S. **Buoyancy effects in liquids**. Cambridge: Cambridge University Press, 1973. 432 p. [75](#)

WESFREID, J. E.; BRAND, H.; MANNEVILLE, P.; ALBINET, G.; BOCCARA, N. **Propagation in systems far from equilibrium**. Berlin: Springer-Verlag New York, 1984. 425 p. [23](#)

WOODING, R. A. Growth of fingers at an unstable diffusing interface in a porous medium or hele-shaw cell. **Journal of Fluid Mechanics**, v. 39, n. 3, p. 477–495, Nov. 1969. [25](#)

XI, H.; GUTNON, J. D. Spatiotemporal chaos in a model of rayleigh-bénard convection. **Physical Review E**, v. 52, n. 5, p. 4963–4975, Nov. 1995. [79](#)

ZIK, O.; OLAMI, Z.; MOSES, E. Fingering instability in combustion. **Physical Review Letters**, v. 81, n. 18, p. 3868–3871, Nov. 1998. [24](#)

ZIMMERMAN, W. B.; HOMSY, G. M. Nonlinear viscous fingering in miscible displacement with anisotropic dispersion. **Physics of Fluids A**, v. 3, n. 8, p. 1859–1872, Aug. 1991. [29](#), [35](#), [39](#)

A APÊNDICE A - ASPECTOS COMPUTACIONAIS

Neste apêndice, apresenta-se os pseudo-algoritmos implementados no desenvolvimento desta tese para os principais sistemas estudados e o custo computacional para cada caso.

A.1 Pseudo-Algoritmos

Os algoritmos implementados em C foram cedidos pela Prof. Anne De Wit da *Université Libre de Bruxelles* durante o estágio de doutorado desta tese. Esses algoritmos foram adaptados para os casos em estudo e foram compilados e executados no cluster da ULB ¹. Esse cluster dispõe de 160 processadores onde cada nó possui dois processadores quad-core de 16Gb de RAM. O compilador da Intel presente no cluster apresenta opções de otimização do algoritmo tais como: vetorização e fusão de “loops”. O custo computacional para o sistema difusivo-advectivo estudado nesse trabalho (veja Capítulo 2 Seção 2.1.3) é de cerca de 10 horas para cada caso, e para o sistema reativo-difusivo-advectivo (veja Capítulo 3 Seção 3.1.2) é de cerca de 72 horas.

O pseudo-algoritmo para ambos os sistemas são similares, e dessa forma optou-se por descreve-los como segue abaixo:

```
// Condição Inicial
for (i=0;i<=lx;i++)
    for (j=0;j<=ly;i++)
        c[i,j]=0;
for (i=0;i<=lx/2;i++)
    for (j=0;j<=ly;i++)
        c[i,j]=1/2*(1+0.001*rand());
for (i=lx/2;i<=ly;i++)
    for (j=0;j<=ly;i++)
        c[i,j]=1;

// Evolução no Domínio Temporal
for (n=1;n<=(lt);n++)
    c[i,j]=\textit{Integração numérica conforme
```

¹Maiores informações sobre o cluster podem ser obtidas em: <http://anic5.ulb.ac.be/>.

descrito na próxima seção}

```
// Cálculo das Medidas Clássicas
```

```
// Escrita dos Resultados
```

A próxima seção apresenta o método espectral usado para a integração numérica das equações dos sistemas usados nesta tese.

A.2 O Método Pseudo-Espectral

O método pseudo-espectral utilizado neste trabalho foi desenvolvido por [Tan e Homsy \(1988\)](#). Em comparação com os métodos de diferenças finitas, o método pseudo-espectral apresenta as seguintes vantagens:

- a) as derivadas espaciais são calculadas com confiabilidade,
- b) para N modos o método envolve $N \log N$ operações, que é um número menor que a quantidade de operações que um método de diferenças finitas utiliza, e
- c) a dispersão física pode ser resolvida, mesmo com número de Pe^2 elevado, sem as complicações da falsa dispersão numérica.

Afim de evitar o fenômeno de Gibbs³ devido as condições de contorno periódicas inerentes ao método, na direção longitudinal o critério de parada é quando os *fingers* atingem a parede direita que é sempre estável se o perfil de mobilidade é favorável.

Seja o seguinte sistema de Equações adimensionais:

$$\nabla^2 \psi = -w \tag{A.1}$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + c_x \psi_y - c_y \psi_x = \nabla^2 c \tag{A.2}$$

$$w = -R(c_x \psi_x + c_y \psi_y + c_y). \tag{A.3}$$

²O número de Peclet neste trabalho é uma variável adimensional que corresponde a largura do sistema.

³O fenômeno de Gibbs ocorre quando há uma deformação no sinal de uma série de Fourier e/ou transformada de Fourier de uma função derivável por partes, próximo a uma região de descontinuidade.

Expandindo os termos dessas Equações em séries de Fourier temos:

$$c(x, y, t) = \sum \sum \hat{c}_{m,n}(t) \cdot e^{i(k_m x + k_n y)} \quad (\text{A.4})$$

$$\psi(x, y, t) = \sum \sum \hat{\psi}_{m,n}(t) \cdot e^{i(k_m x + k_n y)} \quad (\text{A.5})$$

$$w(x, y, t) = \sum \sum \hat{w}_{m,n}(t) \cdot e^{i(k_m x + k_n y)} \quad (\text{A.6})$$

$$k_m = 2\pi m / (A \cdot Pe), \quad k_n = 2\pi n / Pe, \quad m, n = 0, 1, 2, \dots \quad (\text{A.7})$$

onde $\hat{c}_{m,n}$, $\hat{\psi}_{m,n}$ e $\hat{w}_{m,n}$ podem ser calculados pela transformada rápida de Fourier se $c(x, y)$, $\psi(x, y)$ e $w(x, y)$ são conhecidos nos pontos

$$x_m = (m/M)A \cdot Pe \quad (\text{A.8})$$

$$x_n = (n/N)Pe. \quad (\text{A.9})$$

Os termos não-lineares são representados em séries de Fourier da seguinte forma:

$$J(x, y, t) = \psi_y c_x - \psi_x c_y = \sum \sum \hat{J}_{m,n}(t) \cdot e^{i(k_m x + k_n y)} \quad (\text{A.10})$$

$$N(x, y, t) = \psi_x c_x - \psi_y c_y = \sum \sum \hat{N}_{m,n}(t) \cdot e^{i(k_m x + k_n y)}. \quad (\text{A.11})$$

Substituindo nas Equações A.1-A.3 as Equações A.4-A.11, no espaço de Fourier temos o seguinte conjunto de Equações:

$$\hat{\phi}_{m,n} = -\hat{w}_{m,n} / (k_m^2 + k_n^2) \quad (\text{A.12})$$

$$\hat{w}_{m,n} = -R(\hat{N}_{m,n} + ik_n \hat{c}_{m,n}) \quad (\text{A.13})$$

$$\frac{d\hat{c}_{m,n}}{dt} = -\hat{J}_{m,n} - (k_m^2 + k_n^2)\hat{c}_{m,n}. \quad (\text{A.14})$$

Note que diferentemente das Equações A.12 e A.13 que são algébricas, a Equação A.14 é uma Equação diferencial de primeira ordem no tempo. Para resolvê-la utiliza-se o método de Adams-Bashforth para calcular o valor provisório, $\tilde{c}_{m,n}(t + \Delta t)$, sem dispersão. Logo,

$$\frac{\tilde{c}_{m,n}(t + \Delta t) - \hat{c}_{m,n}(t)}{\Delta t} = 1.5\hat{J}_{m,n}(t) - \hat{J}_{m,n}(t - \Delta t) \quad (\text{A.15})$$

e o valor provisório da concentração $\bar{c}_{m,n}(t + \Delta t)$ é dada como

$$\bar{c}_{m,n}(t + \Delta t) = \tilde{c}_{m,n}(t + \Delta t)e^{(k_m^2 + k_n^2)\Delta t}. \quad (\text{A.16})$$

Calculando explicitamente $\bar{w}_{m,n}(t + \Delta t)$ e $\bar{\phi}_{m,n}(t + \Delta t)$ usando as Equações A.12 e A.13, determina-se $\bar{J}_{m,n}(t + \Delta t)$ pela sua definição (Equação A.10) e corrigimos a solução utilizando a regra do trapézio:

$$\frac{\hat{c}_{m,n}(t + \Delta t) - \hat{c}_{m,n}(t)}{\Delta t} = - \left(\frac{\bar{J}_{m,n}(t + \Delta t) + \hat{J}_{m,n}(t)}{2} \right) \quad (\text{A.17})$$

$$-(k_m^2 + k_n^2) \frac{\bar{c}_{m,n}(t + \Delta t) + \hat{c}_{m,n}(t)}{2}. \quad (\text{A.18})$$

Os termos não-lineares são calculados no espaço real e então é aplicada a transformada de Fourier para obter $\hat{J}_{m,n}$ e $\hat{N}_{m,n}$. Todo esquema é de segunda ordem no tempo e pode apresentar instabilidades numéricas para um dado Δt quando o número Pe é alto (TAN; HOMSY, 1988). Para o cálculo da transformada de Fourier utilizamos o biblioteca *FFTW*⁴ da linguagem *C* (FRIGO; JOHNSON, 1999).

⁴Maiores informações sobre a biblioteca veja: <http://www.fftw.org/>.

B APÊNDICE B - PADRÕES CANÔNICOS DE CRESCIMENTO DE INTERFACES E TÉCNICAS DE CARACTERIZAÇÃO

Em geral, os processos de formação de padrões estruturais de interfaces, superfícies e volumes são considerados complexos principalmente devido a grande quantidade de fatores envolvidos na dinâmica de formação que determina uma dada morfologia. Neste contexto, este apêndice apresenta os métodos e as técnicas computacionais que são utilizadas para a análise e caracterização dos dados simulados, considerando uma validação das mesmas através das aplicações em soluções canônicas da equação de KPZ. Esta equação foi introduzida por [Kardar et al. \(1986\)](#) e é considerada um protótipo para o estudo de crescimento de interfaces.

Dessa forma, o apêndice está dividido em duas seções principais: a primeira seção apresenta uma breve descrição da equação de KPZ, que neste trabalho é considerada uma equação protótipo; e a segunda seção apresenta os resultados da aplicação das técnicas de caracterização descritas nos capítulos anteriores em perfis da equação de KPZ.

B.1 Modelo de Formação de Padrões: A equação de KPZ

A equação de KPZ é um modelo contínuo de formação de estruturas que utiliza uma equação diferencial com um caráter estocástico ([KARDAR et al., 1986](#)). Além disso, o processo de crescimento modelado pela equação de KPZ obedece aos principais aspectos físicos do sistema (simetria, equilíbrio e relaxação) ([BARABÁSI; STANLEY, 1995](#); [BARONI, 2005](#)). A equação de Kardar-Parisi-Zhang (KPZ) 1D, dada como:

$$\frac{\partial h}{\partial t} = v \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + \frac{\lambda}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial x} \right)^2 + \eta(x, t), \quad (\text{B.1})$$

é a equação de crescimento mais simples que descreve o processo de crescimento de uma interface ([BARABÁSI; STANLEY, 1995](#); [BATCHELOR et al., 1998](#)). Seus parâmetros são: v e λ relacionados a tensão superficial e o crescimento lateral, respectivamente, e $\eta(x, t)$ o termo de ruído branco. O termo $h(x, t)$ é a altura de uma interface em uma posição do substrato no tempo t .

Para integrar numericamente a equação de KPZ, o método de diferenças finitas baseado no método FTCS (*Forward-Time Centered-Space*) é utilizado. Dessa forma,

a equação de KPZ 1D discretizada é dada por (BARABÁSI; STANLEY, 1995):

$$h(x, t + \Delta t) = h(x, t) + \frac{\Delta t}{(\Delta x)^2} \sum_{i=1}^d (\nu [h(x+1, t) - 2h(x, t) + h(x-1, t)] + \quad (\text{B.2})$$

$$\frac{1}{8} \lambda [h(x+1, t) - h(x-1, t)]^2 + \rho (12\Delta t)^{1/2} \eta(t). \quad (\text{B.3})$$

Perfis são gerados da evolução de $h(x, t)$. Exemplos de perfis instantâneos são mostrados na Figura B.1 para os seguintes valores de parâmetros: $\lambda = 3$ e $\rho = 1$, onde o tamanho do sistema é $L = 1024$ e ν varia de 5 a 100. O termo $\eta(t)$ é uma distribuição de números aleatórios de média igual a zero e variância igual a um, distribuídos entre $-1/2$ e $1/2$.

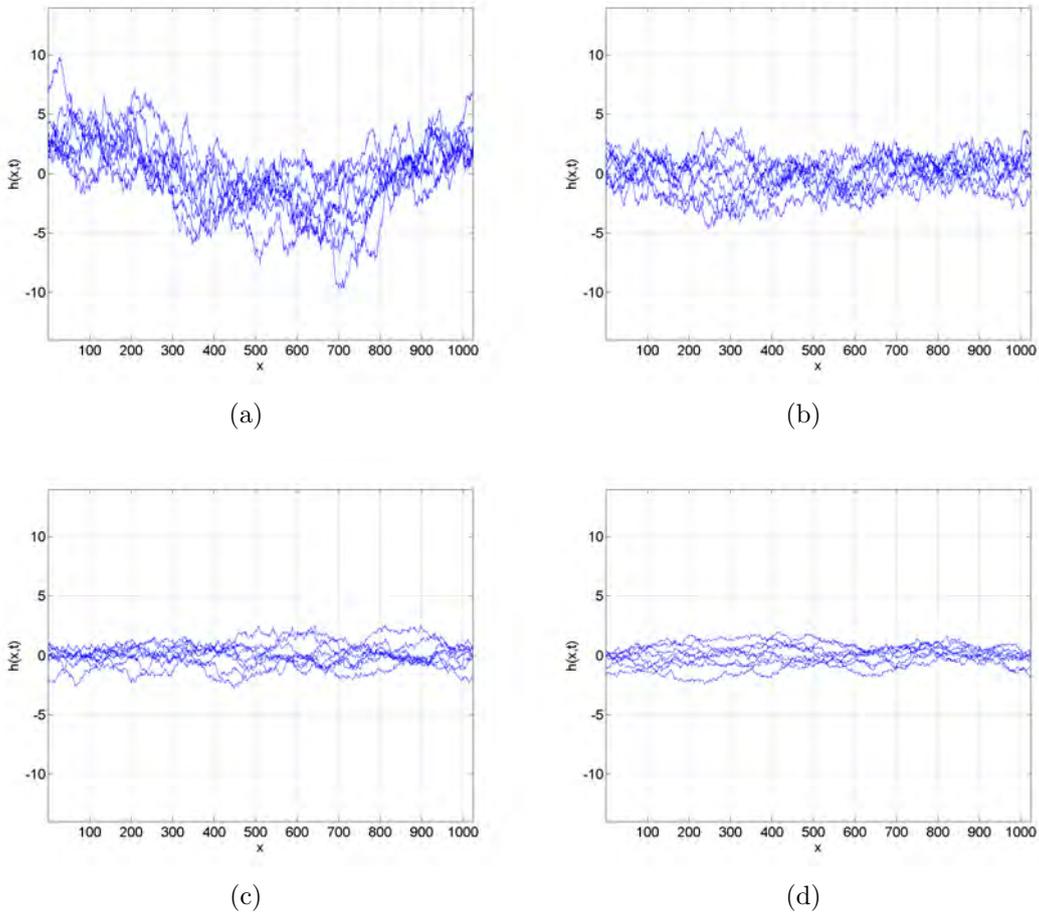


Figura B.1 - Evolução temporal dos padrões da equação de KPZ onde $\lambda = 3$ e $\rho = 1$ sendo a) $\nu = 5$, b) $\nu = 10$, c) $\nu = 50$ e d) $\nu = 100$ para $t = 1500, 3000, 4500, 6000, 7500, 9000$ e 10500 .

A validação da análise utilizando as ferramentas descritas nos Capítulos 2 e 3 são apresentados na próxima seção utilizando perfis unidimensionais de soluções da equação de KPZ.

B.1.1 Validação do Algoritmo

Conceitos de escala têm sido utilizados para classificar a universalidade de um determinado sistema (BARABÁSI; STANLEY, 1995). Dessa forma, próximo de uma região de transição de fase, a maioria das características microscópicas do sistema são descartadas e apenas são consideradas características como: dimensionalidade, simetria e tempo de evolução. O expoente β , ou expoente de crescimento, é um dos expoentes críticos, da análise através de conceitos de escala, utilizado para classificar a classe de universalidade de um determinado sistema. No caso da equação de KPZ, o expoente $\beta = 1/3$ é uma das características da sua classe de universalidade (BARABÁSI; STANLEY, 1995) e é utilizado neste contexto para validar o algoritmo implementado para a integração numérica da equação de KPZ.

Utilizando conceitos de escala é possível obter o expoente de crescimento da seguinte forma: considere um substrato de tamanho L com tempo de formação t e defina a altura média do crescimento da interface (\bar{h}) e a sua largura (W), que caracteriza a rugosidade, por:

$$\bar{h}(t) = \frac{1}{L} \sum_{i=1}^L h(i, t) \quad (\text{B.4})$$

e

$$W(L, t) = \sqrt{\frac{1}{L} \sum_{i=1}^L [h(i, t) - \bar{h}(t)]^2}. \quad (\text{B.5})$$

O expoente β caracteriza a dinâmica temporal dependente do processo de rugosidade (BARABÁSI; STANLEY, 1995). Em outras palavras, a largura aumenta como uma potência do tempo:

$$W(L, t) \approx t^\beta \quad [t \ll t_x]. \quad (\text{B.6})$$

Nesse trabalho, o valor obtido para o expoente de crescimento da equação de KPZ para um sistema de tamanho $L = 1024$ é $\beta = 0,3122$ (veja Figura B.2), resultado que valida a implementação do algoritmo.

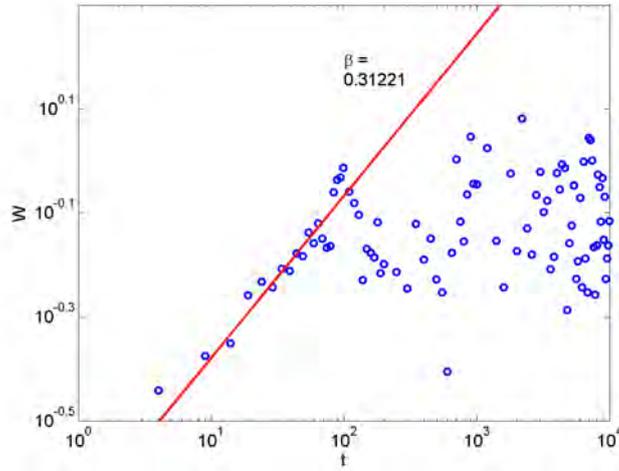


Figura B.2 - Cálculo do expoente de crescimento para a equação de KPZ onde $\lambda = 3$, $\rho = 1$ e $\nu = 10$.

B.2 Análise dos Perfis de Crescimento

Os perfis unidimensionais das soluções da equação de KPZ são analisados nesta seção utilizando as técnicas descritas nos Capítulos 2 e 3. Dessa forma, pretende-se através deste estudo validar os algoritmos das técnicas computacionais com relação a análise de perfis de crescimento/deformação de interfaces.

A Figura B.3 apresenta o cálculo do coeficiente de assimetria gradiente e da razão de aspecto de assimetria para as soluções da equação de KPZ mostrados na Figura B.1. Esse resultado mostra que a variação das assimetrias da equação de KPZ tem tendência semelhante para os diversos valores de ν , indicando que os padrões são assimetricamente equivalentes. Ou seja, flutuam em torno de um valor médio com característica de ruído $1/f^{1.05}$ não expressando dessa forma diferentes faixas de assimetria, mas apresentando características de forte persistência de um determinado nível de assimetria.

Como há uma classe de universalidade conhecida para os perfis gerados para a KPZ, espera-se que a evolução de $\Gamma_A(\ell)$ seja uma lei de potência. Para pequenas escalas, os valores de R_A são grandes, indicando alta variabilidade do sistema com relação as assimetrias. Conforme aumenta-se a escala para o cálculo do coeficiente de assimetria gradiente, rapidamente o valor de R_A decai e tende a zero. Isto indica que o padrão local das assimetrias para uma escala em torno $\ell \approx 200$ é altamente influente na assimetria global do sistema e como previsto segue uma lei de potência $1/f^{0.5}$.

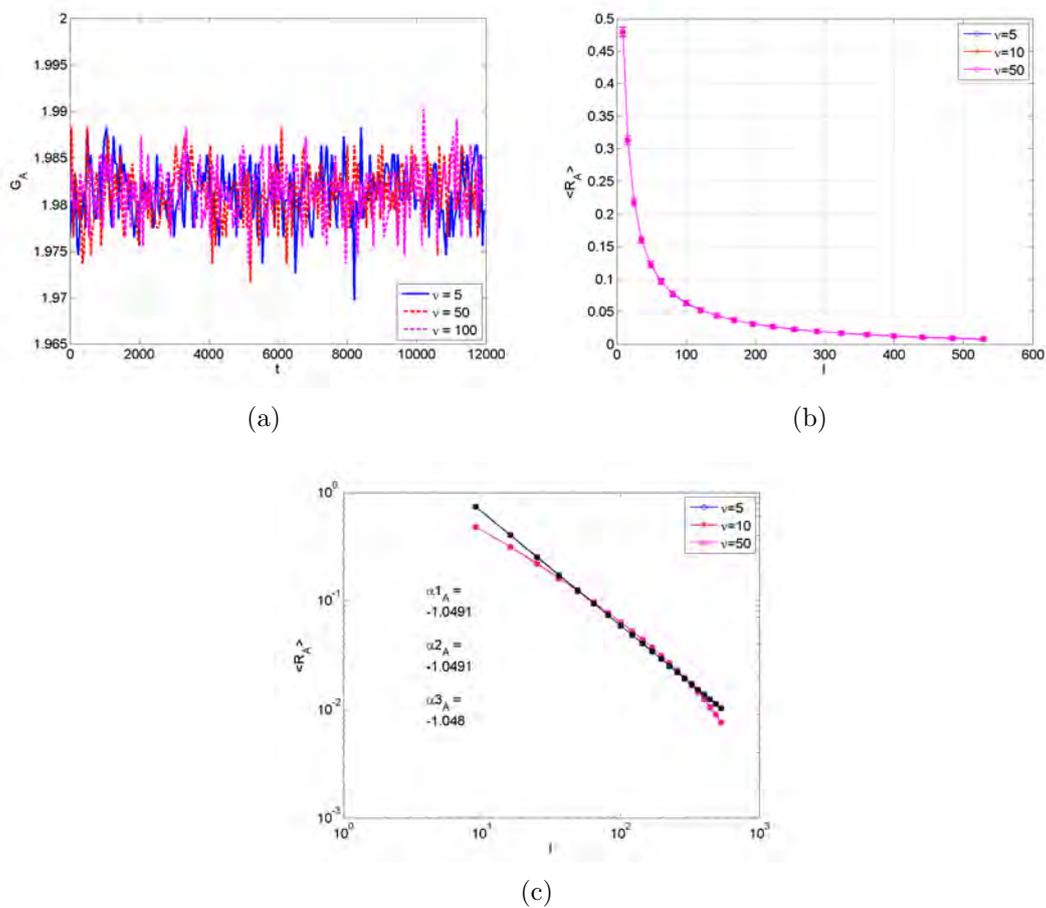


Figura B.3 - a) Cálculo do Coeficiente Gradiente Assimétrico, b) Razão de aspecto assimétrica e b) Espectro de potência da razão de aspecto assimétrica para a equação de KPZ. Os valores médios de G_A para esses casos são: $1,98117 \pm 0,00307$, $1,98113 \pm 0,00305$, $1,98112 \pm 0,003028$.

A Figura B.4(a) apresenta o cálculo do espectro de potência médio no tempo para a equação de KPZ que, devido a ausência de picos, pode-se dizer que não existe nenhum período persistente e, conseqüentemente, nenhum grau de desordem espacial.

A Figura B.4(b) apresenta o resultado do cálculo da entropia espectral para os perfis unidimensionais das soluções da equação de KPZ. Nota-se que não existe uma mudança abrupta de comportamento para esse sistema. Dessa forma, podemos concluir que não existe transição para uma dinâmica complexa, pois a equação de KPZ, apesar de não-linear, não apresenta propriedades caóticas.

A Figura B.4(c) apresenta o resultado para a equação de KPZ do cálculo da função

de autocorrelação espacial que é nula para ℓ pequeno, mas não periódica. Dessa forma, pode-se afirmar que, para os parâmetros escolhidos neste trabalho, a equação de KPZ não tem caráter caótico nem periódico. Esse resultado é coerente com os resultados obtidos para o cálculo da entropia espectral e do espectro de potência, que não apresentaram mudanças abruptas.

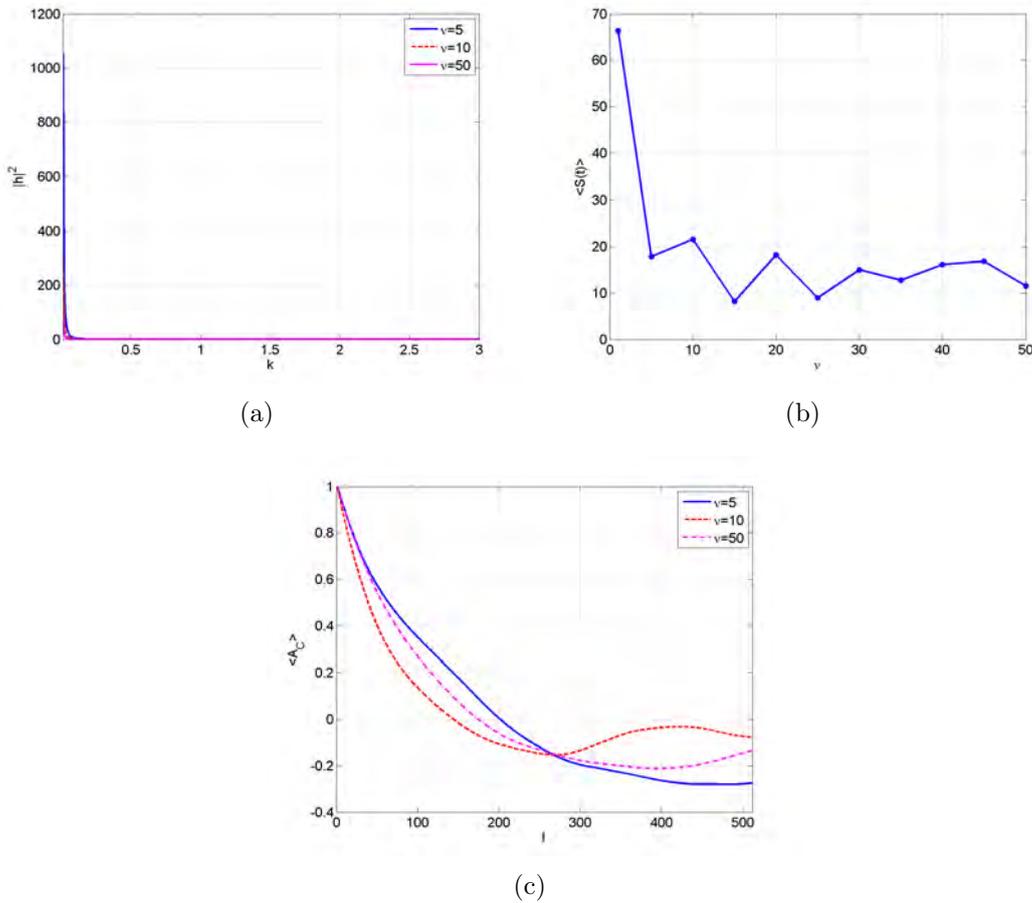


Figura B.4 - (a) Cálculo do espectro de potência médio no tempo para a equação de KPZ. (b) Cálculo da entropia espectral para a equação de KPZ onde ν varia entre 1 e 50. (c) Média temporal da autocorrelação espacial para a equação de KPZ.

Com os resultados obtidos do uso das técnicas na caracterização dos padrões de crescimento de interface obtidos das soluções numéricas da equação de KPZ, considera-se que essas ferramentas são válidas para a caracterização computacional de padrões não-lineares em interfaces.

C APÊNDICE C - ANÁLISE DE ESTABILIDADE LINEAR

A Análise de Estabilidade Linear (AEL) para VF foi introduzida primeiramente por [Tan e Homsy \(1986\)](#). Assumindo uma relação de concentração-viscosidade linear, eles obtiveram uma aproximação de quasi-constante-estado de onde extraíram analiticamente a curva da dispersão que fornece a taxa de crescimento σ das perturbações em função de seu número de onda k ([TAN; HOMSY, 1986](#)). A análise de estabilidade linear para DF pode ser feita de maneira similar ([DE WIT, 2001](#)). Para o caso abordado no Capítulo 2, nota-se que quando $R = R_a = 1$, para tempos curtos, as curvas de dispersão da AEL são equivalentes, ou seja, a constante de crescimento obtida para VF por [Tan e Homsy \(1986\)](#) é dada por:

$$\sigma = \frac{1}{2}[(Rk - k^2) - k\sqrt{(k^2 + 2Rk)}], \text{ em } t=0, \quad (\text{C.1})$$

onde R é a razão de mobilidade e k são os modos de Fourier. No caso de DF, [De Wit \(2001\)](#) obteve a seguinte constante de crescimento de maneira similar a [Tan e Homsy \(1986\)](#) considerando $R_a = 1$:

$$\sigma = \frac{k}{2}[1 - k - \sqrt{(k^2 + 2k)}], \text{ em } t=0, \quad (\text{C.2})$$

Note que, se $R = 1$ as duas equações são equivalentes.

A Figura [C.1](#) apresenta os resultados da AEL onde é possível notar que, segundo as Equações [C.1](#) e [C.2](#), para $R = R_a = 1$, a maior taxa de crescimento é observada quando $t = 0$. Conseqüentemente, essa relação encontrada pela AEL mostra que a equivalência entre os padrões de VF e DF ocorrem para tempos curtos.

Analogamente, a AEL é feita para o sistema abordado no Capítulo 3. A Figura [C.2](#) apresenta o resultado da AEL através do máximo valor da constante de crescimento para o caso de $R = R_a = 0$. Nota-se que o máximo valor acontece quando $D \approx 0,15$. Se $D \rightarrow 0$ ou se $D > 0,15$ o valor da constante de crescimento diminui tendendo a estabilização para $D > D_c \approx 0,4$.

No caso quando a densidade diminui durante a reação, ou seja, $R_a > R_b$, a Figura [C.3](#) mostra instabilidades nas duas frentes de propagação. Especialmente no caso da frente ascendente, o maior valor da constante de crescimento é $D = 0,15$.

No caso quando a densidade aumenta durante a reação, ou seja, $R_a < R_b$, a Figura

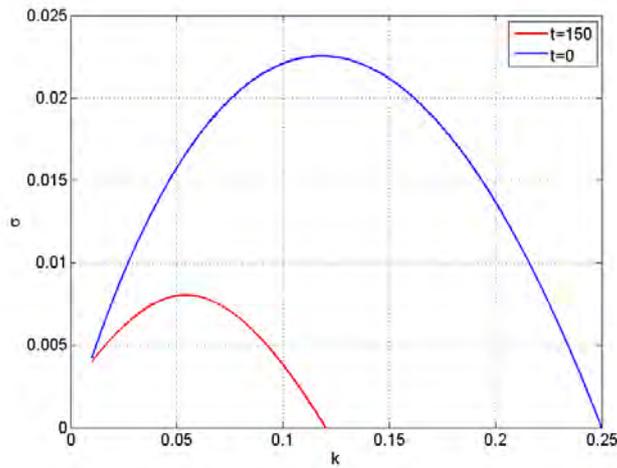


Figura C.1 - Curvas de dispersão para DF onde percebe-se que o maior valor da constante de crescimento acontece para $t = 0$.

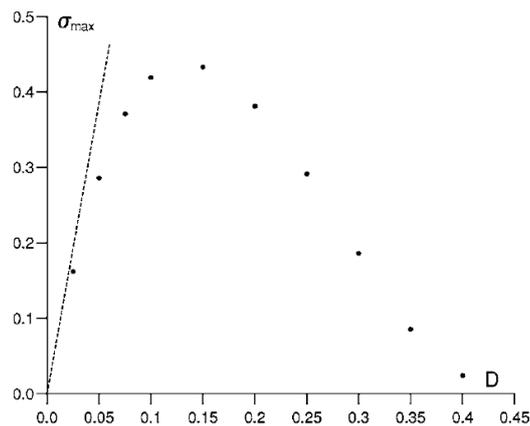


Figura C.2 - Máximo valor da constante de crescimento para diferentes valores de D .

Fonte: Merkin e Kiss (2005).

C.4 mostra que as frentes ascendentes, para diversos valores de R_a , apresentam valores de crescimento negativos, ou seja, indica tendência a estabilidade. Entretanto, existe uma transição quando $R_a = 0,0365$ para $R_a = 0,025$ para o qual a frente de propagação apresenta valores positivos. Entretanto, se comparada com o máximo valor de crescimento da instabilidade puramente difusiva, este valor é menor. Este resultado mostra que o efeito de estabilização das forças ascensionais tem influência mais forte que a desestabilização devido a difusão diferencial.

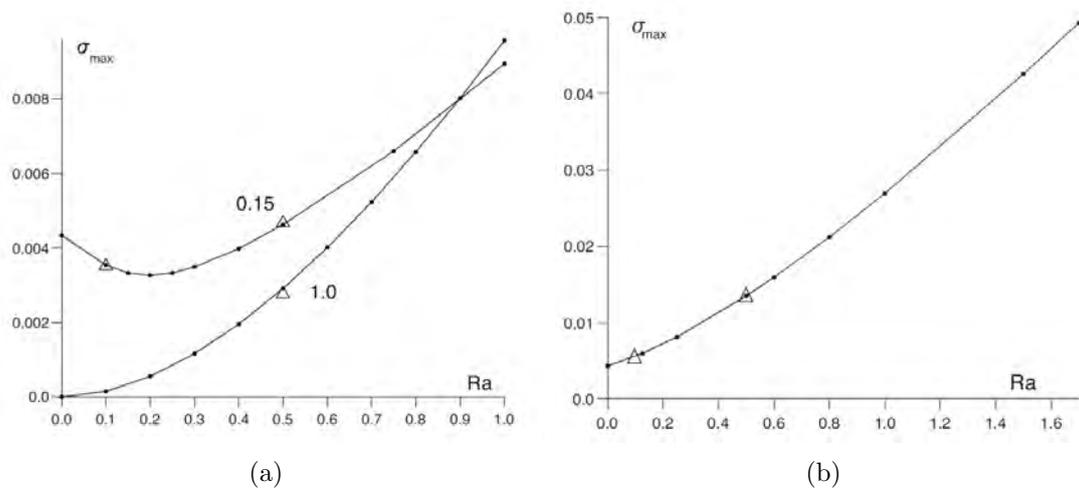


Figura C.3 - Máximo valor da constante de crescimento para diferentes valores de Ra considerando (a) as frentes ascendentes e (b) as frentes descendentes.

Fonte: D'Heroncourt (2007) e D'Heroncourt et al. (2009a).

No caso das frentes descendentes é possível notar a tendência ao decréscimo do valor da constante de crescimento com o aumento do valor de D , considerando $Ra = 0,25$ e $Rb = 0,5$.

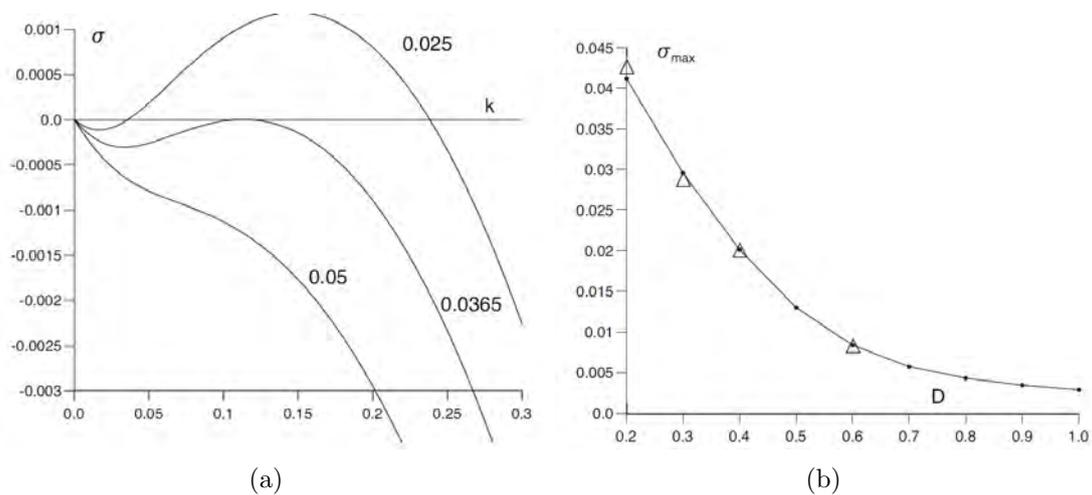


Figura C.4 - (a) Curvas de dispersão para $D = 0,15$ e diferentes valores de Ra para as frentes ascendentes. (b) Máximo valor da constante de crescimento para diferentes valores de D considerado as frentes descendentes.

Fonte: D'Heroncourt (2007) e D'Heroncourt et al. (2009a).

A ANEXO A - LISTA DE PUBLICAÇÕES

Este anexo apresenta os artigos publicados até o presente momento, durante o doutoramento (2005-2009):

- Baroni, MPMA; Rosa, RR; Ferreira da Silva, A; Roman, LS; Ramos, FM; Ahuja, R; Persson, C; Veje, E. *Modeling and gradient pattern analysis of irregular SFM structures of porous silicon*, **Microelectronics Journal**, v. 37, n. 4, p. 290-294, Abril 2006. Qualis B.
- Baroni, MPMA; Teixeira, SR; Dixon, JB; White, GN. Aplicação de programa de análise de imagens na interpretação de fotomicrografias de alta resolução de argilominerais, **Cerâmica**, v. 56, n. 322, p. 179-184, Abr/Jun 2006. Qualis A.
- Baroni, MPMA; Conceição, MV; Rosa, RR; Persson, C; Arwin, H; Silva, EF, JR; Roman, LS; Nakamura, O; Pepe, I; Ferreira da Silva, A. *Optical and morphological properties of porous diamond like carbon films deposited by magnetron sputtering*, **Journal of Non Crystalline Solids**, v. 352, n. 32-35, p. 3734-3738, Nov. 2006. Qualis A.
- Rosa, RR; Baroni, MPMA; Zaniboni, GT; Ferreira da Silva, A; ROMAN, LS; PONTES, J; Bolzan, MJA. *Structural complexity of disordered surfaces: Analyzing the porous silicon SFM patterns*, **Physica A: Statistical Mechanics and its Applications**, v. 386, n. 2, p. 666-673, Dez. 2007. Qualis A.
- Baroni, MPMA; Rosa, RR; De Wit, A. *Structural differences between miscible density and viscous fingering dynamics measured by gradient pattern analysis*, **Physica Review E**, submitted (nº EX10508), Out. 2008. Qualis A.

PUBLICAÇÕES TÉCNICO-CIENTÍFICAS EDITADAS PELO INPE

Teses e Dissertações (TDI)

Teses e Dissertações apresentadas nos Cursos de Pós-Graduação do INPE.

Manuais Técnicos (MAN)

São publicações de caráter técnico que incluem normas, procedimentos, instruções e orientações.

Notas Técnico-Científicas (NTC)

Incluem resultados preliminares de pesquisa, descrição de equipamentos, descrição e ou documentação de programas de computador, descrição de sistemas e experimentos, apresentação de testes, dados, atlas, e documentação de projetos de engenharia.

Relatórios de Pesquisa (RPQ)

Reportam resultados ou progressos de pesquisas tanto de natureza técnica quanto científica, cujo nível seja compatível com o de uma publicação em periódico nacional ou internacional.

Propostas e Relatórios de Projetos (PRP)

São propostas de projetos técnico-científicos e relatórios de acompanhamento de projetos, atividades e convênios.

Publicações Didáticas (PUD)

Incluem apostilas, notas de aula e manuais didáticos.

Publicações Seriadas

São os seriados técnico-científicos: boletins, periódicos, anuários e anais de eventos (simpósios e congressos). Constam destas publicações o Internacional Standard Serial Number (ISSN), que é um código único e definitivo para identificação de títulos de seriados.

Programas de Computador (PDC)

São a seqüência de instruções ou códigos, expressos em uma linguagem de programação compilada ou interpretada, a ser executada por um computador para alcançar um determinado objetivo. Aceitam-se tanto programas fonte quanto os executáveis.

Pré-publicações (PRE)

Todos os artigos publicados em periódicos, anais e como capítulos de livros.