

DETECÇÃO DA COALESCÊNCIA DE GOTAS POR FLUORESCÊNCIA INDUZIDA POR LASER

Gabriel de Souza, gabrielsouza171216@usp.br¹

Arthur Vieira da Silva Oliveira, avs.oliveira@usp.br²

¹Escola de Engenharia de São Carlos - Universidade de São Paulo, Av. Trab. São Carlense, 400 - Parque Arnold Schmidt, São Carlos - SP, 13566-590

²Escola de Engenharia de São Carlos - Universidade de São Paulo, Av. Trab. São Carlense, 400 - Parque Arnold Schmidt, São Carlos - SP, 13566-590

Resumo. O impacto de gotas sobre superfícies ocorre em diversas aplicações industriais, como no resfriamento de metais aquecidos, na pulverização agrícola e na deposição de materiais na manufatura aditiva. Apesar de muitos trabalhos se concentrarem em impactos de gotas únicas, situações reais envolvem interações entre múltiplas gotas. Quando uma gota já aderida ao substrato é atingida por outra, a coalescência entre elas pode modificar substancialmente o comportamento do spray. Compreender esses processos é essencial para modelar com precisão os fenômenos de impacto. Neste trabalho, exploramos a coalescência resultante do impacto entre gotas utilizando fluorescência induzida por laser. Uma das gotas foi marcada com o corante fluorescente sulforodamina B (10^{-6} mol/L), enquanto a outra não continha corante. As interações foram capturadas por uma câmera de alta velocidade (5.000 fps, 15,22 $\mu\text{m}/\text{pixel}$). Utilizou-se um laser pulsado de alta energia e frequência para excitação fluorescente, além de iluminação de fundo para melhorar a visualização. Mesmo para diferentes velocidades de impacto e distâncias entre os centros das gotas, observamos a formação de um pescoço fluorescente que marcava o início da coalescência, seguido pela mistura dos fluidos. Apresentamos os detalhes deste resultado de detecção do início da coalescência e discutimos as dificuldades da quantificação da mistura (em fração volumétrica) devido a efeitos ópticos.

Palavras chave: LIF. Sprays. Mecânica dos fluidos.

Abstract. Droplet impact on surfaces occurs in several industrial applications, such as cooling of heated metals, agricultural spraying, and material deposition in additive manufacturing. Although many studies focus on single droplet impacts, real-world situations involve interactions between multiple droplets. When a droplet already adhered to the substrate is struck by another, the coalescence between them can substantially modify the spray behavior. Understanding these processes is essential to model impact phenomena accurately. In this work, we explore the coalescence resulting from droplet impact using laser-induced fluorescence. One of the droplets was labeled with the fluorescent dye sulforhodamine B (10^{-6} mol/L), while the other was undyed. The interactions were captured by a high-speed camera (5,000 fps, 15.22 $\mu\text{m}/\text{pixel}$). A high-energy, high-frequency pulsed laser was used for fluorescent excitation, and background illumination was used to improve visualization. Even for different impact velocities and distances between droplet centers, we observed the formation of a fluorescent neck that marked the beginning of coalescence, followed by mixing of the fluids. We present the details of this result of detecting the beginning of coalescence and discuss the difficulties of quantifying mixing (in volumetric fraction) due to optical effects.

Keywords: LIF, Sprays, Fluid mechanics.

1. INTRODUÇÃO

Desde o século XV, com contribuições de estudiosos como Da Vinci, Hawksbee e Laplace, o estudo de gotas e fenômenos capilares tem despertado grande interesse, tanto pelas suas diversas aplicações quanto pela complexidade científica envolvida. Um dos comportamentos mais intrigantes nesse contexto ocorre quando gotas interagem com superfícies aquecidas como no efeito Leidenfrost (1966), no qual, ao atingir uma superfície a uma temperatura muito superior ao ponto de ebulição do líquido, forma-se uma camada de vapor entre o líquido e o sólido. Essa camada atua como isolante térmico, fazendo com que a gota levite sobre a superfície quente.

O resfriamento de superfícies por meio de sprays apresenta diversas vantagens, destacando-se a capacidade de promover uma dissipação térmica homogênea com altas taxas de transferência de calor, como pode ser visto em trabalhos recentes como em (G. Liang and I. Mudawar, (2017a)) e (G. Liang and I. Mudawar, (2017b)). Por essa razão, essa técnica é amplamente utilizada em áreas como a metalurgia, no resfriamento de placas e cilindros, no controle térmico de componentes eletrônicos e até mesmo em sistemas de resfriamento de reatores nucleares. Em aplicações isotérmicas, a técnica

também é explorada em processos como o impacto de gotas de tinta sobre papel na impressão, na pintura automotiva e aeronáutica, bem como na formulação de emulsões e encapsulamentos na indústria farmacêutica.

A maior parte dos estudos disponíveis na literatura concentra-se no impacto de gotas isoladas sobre superfícies. No entanto, dependendo da densidade do spray (Fig. 1), diferentes níveis de interação entre gotas podem ocorrer. Em sprays diluídos, as interações são desprezíveis, permitindo tratar o fenômeno como múltiplos impactos independentes; em sprays intermediários, essas interações podem interferir no espalhamento da lamela ou provocar coalescência; já em sprays densos, a intensidade das interações é tal que uma película contínua de líquido se forma sobre a superfície. Portanto, embora os estudos com gotas isoladas contribuam significativamente para a compreensão dos fenômenos fundamentais, eles não são suficientes para descrever adequadamente o comportamento de sprays reais, como discutido em (A.L.N. Moreira et al., (2010)). Modelos hidrodinâmicos e térmicos comumente utilizados para estimar a energia dissipada durante o impacto de uma única gota tornam-se inválidos em regimes mais densos, onde predominam interações complexas entre gotas, restando apenas correlações empíricas específicas para determinadas aplicações.

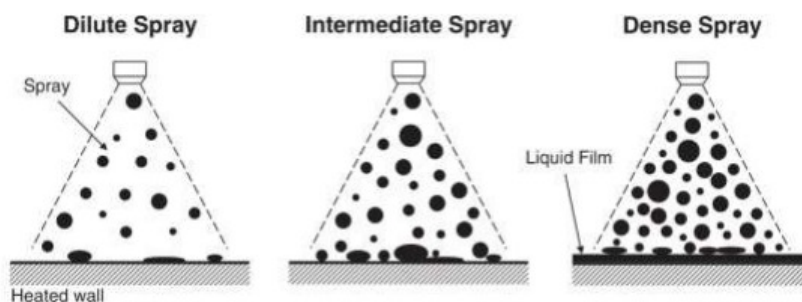


Figura 1. Tipos de spray de acordo com a densidade de gotas, variando desde interações desprezíveis (diluído), passando por interações intermitentes (intermediário), até interações intensas com formação de filme líquido (denso). Retirado de (G. Liang and I. Mudawar, (2017a))

Diante disso, torna-se fundamental investigar as interações entre gotas durante o impacto para compreender como elas influenciam a transferência de calor com a superfície. Nos últimos anos, estudos hidrodinâmicos sobre colisões de gotas têm ganhado destaque na literatura, como em (Castrejon-Pita et al., (2013)), refletindo o crescente interesse por esses fenômenos devido à sua relevância em diversos setores industriais, na agricultura e em processos naturais.

Neste contexto, o presente artigo propõe um estudo sobre a detecção da coalescência entre gotas por meio da técnica de fluorescência induzida por laser (LIF), técnica bastante esclarecida por (Chaze *et al.* (2016)), na qual uma gota contendo o corante fluorescente Sulforrodamina B Sodium Salt é inicialmente depositada sobre uma superfície, sendo posteriormente impactada por uma segunda gota, cujo ponto de impacto pode coincidir com o centro da gota sésil ou ocorrer com um deslocamento lateral entre os centros (offset). Após o impacto, ambas as gotas são iluminadas por um laser pulsado de alta frequência, fazendo com que o corante atue como um marcador fluorescente que permite visualizar a mistura dos fluidos e, consequentemente, identificar a ocorrência de coalescência. O experimento foi conduzido sob diferentes condições, variando-se a velocidade de impacto da gota incidente e a distância entre os centros das gotas, de modo a investigar a influência desses parâmetros na dinâmica do processo. Os resultados obtidos contribuem para o aprimoramento da técnica LIF como ferramenta de medição de concentração por meio da análise da mistura dos fluidos, além de fornecerem subsídios para estudos futuros envolvendo sistemas de sprays mais complexos.

2. Metodologia

Um diagrama esquemático do aparato experimental, desenvolvido originalmente pelos autores, é apresentado na Fig. 2. A bomba de seringa é alimentada por um sistema de mangueiras com duas vias: uma contém a solução de Sulforrodamina B, um corante fluorescente, e a outra via contém água pura. Inicialmente, uma gota da solução dopada com corante (gota sésil) é depositada sobre um substrato de vidro proveniente da via com fluido com corante. Em seguida, o estágio de translação, acionado por um motor de passo de alta precisão (20 μm), desloca a superfície de vidro até que a gota sésil fique posicionada logo abaixo da segunda agulha, que está conectada à via com água pura. Nesse ponto, a segunda gota, a gota impactante, é liberada sobre a gota sésil, configurando o fenômeno de impacto de gota sobre gota. Em alguns casos, os centros das gotas apresentam um pequeno deslocamento lateral (offset). O objetivo do experimento é fazer com que a gota dopada com corante emita fluorescência quando iluminada por um feixe de laser de alta energia com comprimento de onda de 532 nm, projetado de forma a atingir a gota de baixo para cima. O corante fluorescente atua como um marcador, permitindo a análise da mistura dos fluidos e a observação da coalescência, incluindo a detecção precisa do início da coalescência e dos diferentes regimes de impacto.

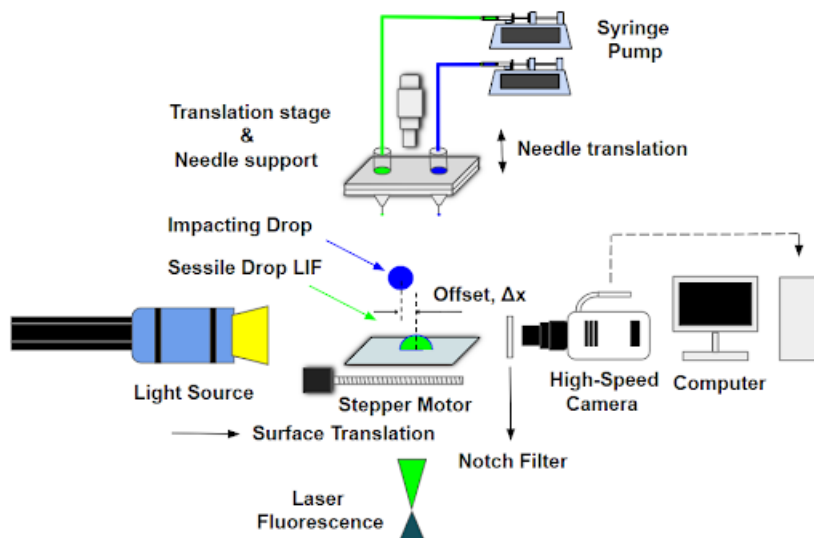


Figura 2. Diagrama esquemático do aparato experimental

O sistema de deposição, composto por mangueiras e agulhas, está acoplado a um estágio de translação vertical equipado com um micrômetro, o que permite uma variação precisa da altura e, consequentemente, um controle rigoroso da velocidade de impacto das gotas. Além disso, todo o processo foi registrado por uma câmera de alta velocidade (Photron NOVA S6), operando a 5.000 quadros por segundo, com resolução espacial de 15,22 μm por pixel. A iluminação das gotas foi realizada por um laser pulsado de alta energia e alta frequência, enquanto uma iluminação de fundo foi utilizada para aprimorar a visualização por meio da técnica de sombra (shadowgraph). Para a realização dos experimentos, foi projetado e montado um aparato experimental dedicado, cuja configuração final é apresentada na Fig. 3.

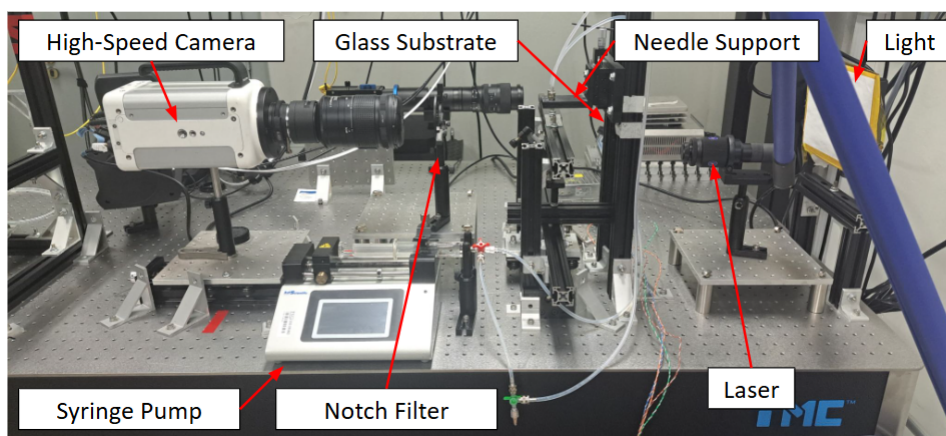


Figura 3. Setup experimental desenvolvido para os experimentos de detecção de coalescência

3. Resultados

3.1 Detecção da coalescência

A detecção do início da coalescência entre a gota impactante e a gota sésil foi conduzida por meio da combinação das técnicas de shadowgraph e fluorescência induzida por laser (*Laser-Induced Fluorescence* – LIF). Para isso, a gota sésil foi dopada com corante fluorescente e iluminada por um feixe de laser plano, enquanto a gota impactante, composta de água pura, não emitia fluorescência. O laser era emitido por baixo da montagem experimental, sendo redirecionado verticalmente por um espelho posicionado logo abaixo do substrato de vidro, permitindo a formação de um plano de iluminação coincidente com a região de interação entre as gotas. Essa configuração permitiu distinguir visualmente as duas fases: a gota sésil apresentava brilho característico nas imagens, enquanto a gota impactante aparecia como uma região escura.

Durante os experimentos, foi possível identificar empiricamente um marcador visual consistente do início da coalescência: a formação de um pescoço luminoso no exato instante em que ocorre o rompimento da interface líquido-líquido entre as gotas. Esse brilho concentrado que surge no ponto de contato é resultado de um fenômeno de convergência

óptica, no qual o feixe de laser se concentra na região do pescoço formado entre as gotas, intensificando a emissão da fluorescência. A presença dessa emissão localizada foi interpretada como um sinal inequívoco do início do processo de coalescência, sendo observada de forma recorrente nos registros obtidos. A Figura 4 ilustra esse comportamento, evidenciando o surgimento do pescoço luminoso como indicativo da fusão inicial entre as gotas.

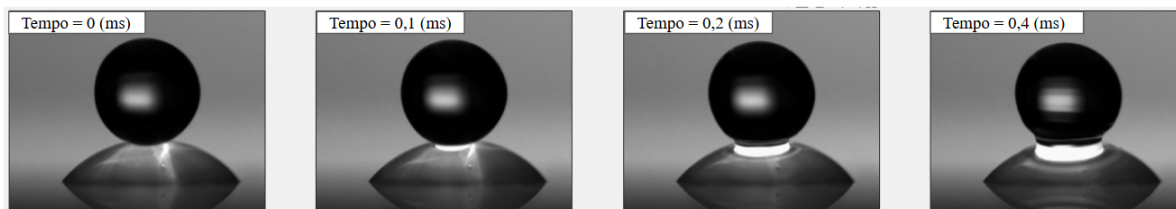


Figura 4. : Sequência de frames que demonstra a formação de uma borda reflexiva indicando a coalescência

Embora essa abordagem não permita a quantificação precisa da mistura ou o rastreamento detalhado dos fluxos internos, a identificação do pescoço luminoso mostrou-se uma ferramenta qualitativa eficaz para delimitar temporalmente o início da coalescência nas análises realizadas. Através dos registros obtidos por fluorescência induzida por laser, foi possível identificar empiricamente o surgimento desse pescoço luminoso como um indicativo visual claro do início da coalescência entre as gotas. A seguir, serão apresentados três exemplos de regimes distintos observados durante os experimentos: coalescência direta, coalescência acompanhada por congutinação e coalescência durante a fase de retração. Em cada um desses casos, destaca-se a formação do pescoço luminoso e o tempo decorrido entre o impacto inicial da gota impactante e o aparecimento desse brilho concentrado. Essa análise não apenas confirma a ocorrência da coalescência, mas também possibilita comparar como a dinâmica do processo varia conforme o regime envolvido. O fenômeno observado, indicado de forma empírica, é bastante conclusivo, pois sempre que o pescoço luminoso surge, a gota impactante é completamente absorvida pela gota sésil, evidenciando que a coalescência de fato se concretiza após o aparecimento dessa estrutura.

No regime de coalescência direta, identificado para número de Weber igual a 1,9, a fusão entre as gotas ocorre de forma imediata. Considera-se, neste trabalho, como tempo até a coalescência o intervalo decorrido entre o primeiro contato entre a gota impactante, composta por água pura, e a gota sésil, dopada com corante fluorescente, até o surgimento do pescoço luminoso, estrutura brilhante que marca o rompimento da interface líquido-líquido e indica empiricamente o início da coalescência. Nesse regime, o pescoço luminoso aparece já no exato momento do contato inicial, como pode ser observado no primeiro quadro da Figura 5, o que indica um tempo até a coalescência praticamente nulo. A partir desse instante, essa região brilhante se expande progressivamente, aumentando seu diâmetro. No sétimo quadro, embora o processo de coalescência já esteja em andamento, é possível visualizar com mais clareza o transporte de fluido da gota impactante para o interior da gota sésil, evidenciando a continuidade da fusão entre os dois volumes líquidos.

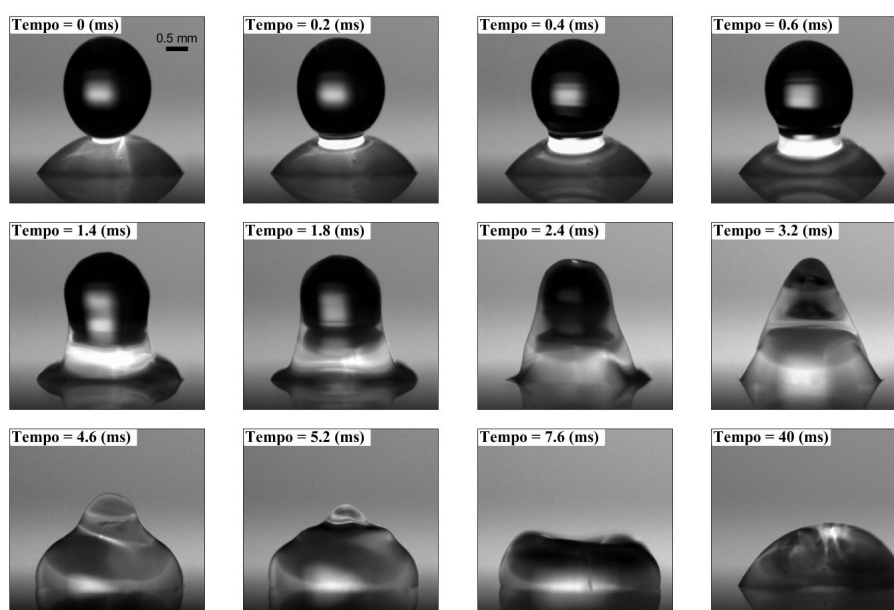


Figura 5. : Imagem da colisão e coalescência direta entre duas gotas. $v = 0.255$ m/s, $We = 1.9$. A gota impactante é de água pura e a gota sésil uma solução com corante Sulforhodamina B em uma superfície de vidro

No regime de coalescência acompanhado por conglutinação, correspondente a um número de Weber igual a 2,7, o início da coalescência não ocorre imediatamente após o primeiro contato entre a gota impactante e a gota séssil, como observado no regime de coalescência direta. Logo após o impacto, observa-se que a gota impactante penetra parcialmente na gota séssil, sem que haja, de imediato, a fusão entre os líquidos. Nesse momento inicial, a interface líquido-líquido ainda permanece intacta, sugerindo uma resistência à coalescência. Em seguida, a gota impactante inicia um movimento de recuo, como se tentasse se desprender da gota séssil. É justamente nesse estágio, quando a gota impactante está prestes a se afastar, que se observa o aparecimento do pescoço luminoso, indicativo visual claro da ruptura da interface e, portanto, do início da coalescência. Esse brilho concentrado, observado no sexto quadro da Figura 6, surge aproximadamente 16,2 ms após o instante do impacto, tempo que aqui é considerado como o tempo de coalescência. A partir desse ponto, a estrutura luminosa se expande gradualmente, com o pescoço aumentando de diâmetro e promovendo a fusão entre os líquidos. Por volta de 21,2 ms, já é possível observar a gota impactante sendo novamente incorporada à gota séssil, concluindo o processo de coalescência de forma clara e definitiva.

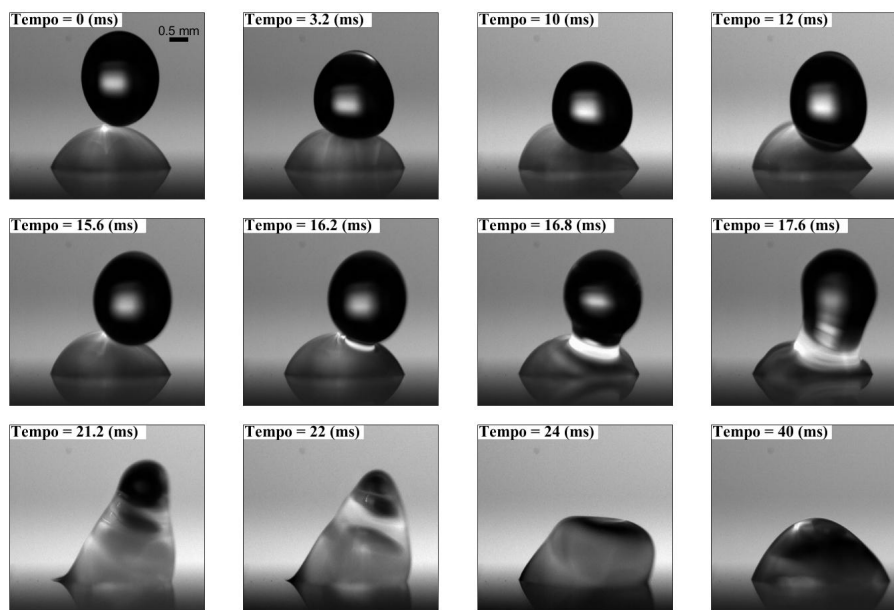


Figura 6. : Imagem da colisão e coalescência acompanhada por conglutinação entre duas gotas. $v = 0.305$ m/s, $We = 2.7$. A gota impactante é de água pura e a gota séssil uma solução com corante Sulforhodamina B em uma superfície de vidro

Por fim, no regime de coalescência durante a fase de retração, correspondente a um número de Weber igual a 8,56, observa-se novamente que o início da coalescência não ocorre de forma imediata após o primeiro contato entre a gota impactante e a gota séssil, como ocorre no regime de coalescência direta. No entanto, o tempo até a coalescência é significativamente menor do que aquele observado no regime de coalescência acompanhada por conglutinação, o que pode ser atribuído à maior velocidade de impacto e, consequentemente, à maior energia cinética envolvida. Conforme ilustrado na Figura 7, a gota impactante colide com a gota séssil e se espalha completamente sobre sua superfície, atingindo um diâmetro de espalhamento máximo em aproximadamente 3,4 ms. Em seguida, durante a fase de retração, em que a gota impactante tende a retornar ao seu formato esférico original, observa-se o surgimento do pescoço luminoso com 5,6 ms após o impacto. Esse tempo é, portanto, considerado o tempo de coalescência para este regime. Um aspecto interessante neste caso é que o pescoço luminoso parece emergir já com um diâmetro relativamente grande, e, ao contrário dos demais regimes, inicia um processo de fechamento gradual. A partir do surgimento dessa estrutura, a coalescência evolui com a progressiva incorporação da gota impactante pela gota séssil, até que a fusão entre ambas se complete, por volta de 24 ms.

A partir dos experimentos realizados, observando diferentes velocidades de impacto da gota impactante, foi possível concluir que o pescoço luminoso, uma estrutura observada empiricamente, é um indicativo claro do início da coalescência. No entanto, não foi encontrada uma relação diretamente proporcional entre a velocidade de impacto e o tempo até a coalescência. Cada regime de impacto apresentou um tempo específico de coalescência, que se repetiu de forma consistente nos ensaios realizados. Além disso, essa estrutura luminosa se fez presente de maneira mais evidente quando as gotas estavam com seus centros coincidentes. Em testes onde as gotas foram deslocadas, a estrutura luminosa se mostrou mais sutil ou não apareceu, provavelmente devido ao fenômeno de convergência dos feixes de laser.

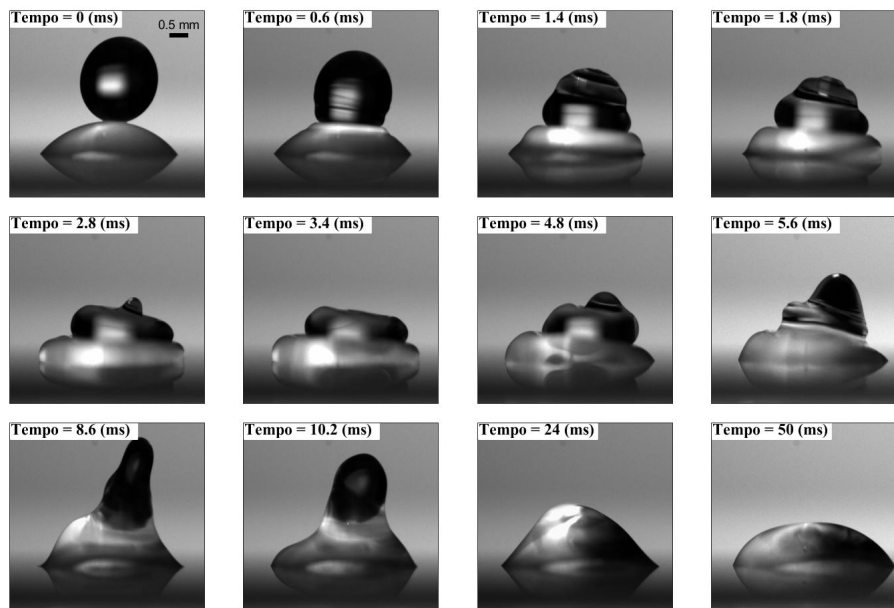


Figura 7. : Imagem da colisão e coalescência durante fase de retração entre duas gotas com offset de 1 mm. $\nu = 0.542$ m/s, $We = 8.56$. A gota impactante é de água pura e a gota sésil uma solução com corante Sulforhodamina B em uma superfície de vidro

3.2 Efeitos ópticos

Durante os experimentos, dois efeitos ópticos se mostraram cruciais para a obtenção dos resultados, impactando tanto positivamente quanto negativamente as análises. O primeiro fenômeno, que se revelou benéfico, foi a ressonância óptica que ocorreu no topo das gotas. Esse efeito, causado pela convergência dos feixes de laser, resultou na visualização clara da formação do pescoço luminoso, uma estrutura que se mostrou essencial para indicar o início da coalescência em ensaios de gota sobre gota centradas. No entanto, um segundo efeito óptico, a contaminação por fluorescência na gota impactante, prejudicou a análise e quantificação dos dados. Esse fenômeno dificultou a distinção entre os dois fluidos e comprometeu a precisão das medições dos fluxos internos, conforme será discutido a seguir.

A contaminação por fluorescência na gota impactante ocorreu devido à reflexão e posterior refração da luz fluorescente na superfície da gota, resultando em níveis de fluorescência semelhantes aos da gota sésil. Como consequência, ambas os fluidos se tornaram visualmente indistinguíveis em termos de intensidade luminosa em diversas regiões, prejudicando a análise quantitativa da mistura e a observação dos fluxos internos. Esse efeito óptico dificultou a separação dos fluidos, o que impossibilitou a quantificação precisa da mistura e a análise detalhada dos fluxos — pela equação da fluorescência, esperava-se quantificar a fração volumétrica de cada gota após a mistura pelo nível digital da imagem. A Figura 8 ilustra claramente a ocorrência dessa contaminação no topo da gota impactante, como se esta parte fizesse parte da gota dopada (sésil), mas se tratava apenas de um efeito óptico.

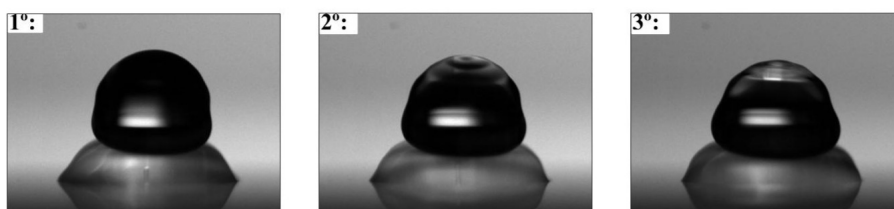


Figura 8. : Sequência de frames que demonstra a contaminação de fluorescência na gota impactante

Para mitigar o problema de contaminação entre as gotas, algumas melhorias podem ser implementadas no experimento. Uma alternativa seria a utilização de corantes diferentes para a gota impactante e para a gota sésil, o que permitiria a distinção clara entre os fluidos e facilitaria a análise da mistura. Outra abordagem seria dopar a gota impactante com um corante específico, de modo a evitar a sua contaminação com a fluorescência da gota sésil. Além disso, é fundamental realizar um controle rigoroso sobre a concentração do corante utilizado e a potência do laser, uma vez que a alta intensidade do feixe pode resultar em uma saturação da imagem, especialmente devido ao fenômeno de ressonância óptica no topo das gotas. Essa saturação pode prejudicar a qualidade das imagens, dificultando a identificação precisa da formação

do pescoço luminoso e comprometendo a análise. Portanto, ajustes cuidadosos nesses parâmetros são essenciais para otimizar a qualidade das imagens e a precisão dos resultados experimentais.

4. Conclusões

Este estudo representa um avanço significativo na análise experimental da coalescência entre gotas em impacto, com ênfase na detecção precisa do momento inicial desse fenômeno. A bancada experimental desenvolvida se mostrou eficaz, permitindo a obtenção de imagens de alta qualidade por meio das técnicas de Shadowgraph e fluorescência induzida por laser (LIF). A integração dessas duas abordagens proporcionou um mapeamento visual robusto, essencial para o estudo dos regimes dinâmicos de impacto e coalescência.

Um dos principais achados desse estudo foi a identificação do “pescoço” luminoso, visível nas imagens obtidas por LIF, como um indicativo confiável do início da coalescência. Essa estrutura luminosa, que ocorre devido a uma ressonância óptica, se formou consistentemente nas diferentes condições experimentais e se mostrou uma ferramenta empírica essencial para detectar a coalescência, mesmo nos regimes de impacto rápidos. A partir desse fenômeno visual, foi possível caracterizar com precisão os tempos de coalescência em diferentes regimes, contribuindo para uma melhor compreensão da dinâmica de fusão entre as gotas. No entanto, é importante destacar que o pescoço luminoso não foi observado em impactos de gotas não centradas. Esse fenômeno visual, que se mostrou indicativo do início da coalescência, esteve presente apenas quando as gotas estavam alinhadas de forma precisa, com seus centros coincidentes. Enfim, observamos contaminação óptica da fluorescência da gota sêssil na gota impactante, que dificultou a distinção entre os fluidos em algumas situações.

5. AGRADECIMENTOS

O presente trabalho foi realizado com apoio da Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP), Brasil. Processo nº 2021/01897-0, por meio da bolsa Jovem Pesquisador. Acrescenta-se, ainda, o apoio do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq), Brasil. Processo nº 2023-1382, por meio da bolsa PIBIC.

6. REFERÊNCIAS

- A.L.N. Moreira et al., 2010. “Advances and Challenges in Explaining Fuel Spray Impingement: How Much of Single Droplet Impact Research Is Useful?” *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. vol. 36,, pp. 554–580.
- Castrejon-Pita et al., 2013. “Mixing and Internal Dynamics of Droplets Impacting and Coalescing on a Solid Surface”. *Physical Review E*, Vol. vol. 88,, p. 023.
- Chaze, W., Caballina, O., Castanet, G. and Lemoine, F., 2016. “The saturation of the fluorescence and its consequences for laser-induced fluorescence thermometry in liquid flows”. *Experiments in Fluids*, Vol. 57, pp. 1–18.
- G. Liang and I. Mudawar,, 2017a. “Review of Spray Cooling – Part 1: Single-phase and Nucleate Boiling Regimes, and Critical Heat Flux”. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. vol.115,, pp. 1174–1205,. doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2017.06.029.
- G. Liang and I. Mudawar,, 2017b. “Review of Spray Cooling – Part 2: High Temperature Boiling Regimes and Quenching Applications”. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. vol. 115,, pp. 1206–1222,. doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2017.06.022.
- Leidenfrost, J.G., 1966. “On the Fixation of Water in Diverse Fire (from ‘A Tract About Some Qualities of Common Water’, 1756)”. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. vol.9,, No. no.11, pp. 1153–1166. doi: [https://doi.org/10.1016/0017-9310\(66\)90111-6](https://doi.org/10.1016/0017-9310(66)90111-6).