



UNIVERSIDAD  
POLITÉCNICA  
DE VALENCIA

DEPARTAMENTO DE INGENIERÍA  
ELECTRÓNICA

TESIS DOCTORAL

“Estudio y Análisis del Efecto Rugoso sobre la Respuesta  
del Sensor de Cuarzo AT en Medios Fluidos”

Presentada por: Román Fernández Díaz  
Dirigida por: Dr. Antonio Arnau Vives



Este trabajo de tesis ha sido financiado por el siguiente proyecto:

Proyecto del PN I+D financiado por el Ministerio de Ciencia y Tecnología (CICYT): “Desarrollo de inmunosensores piezoeléctricos para la detección de plaguicidas n-metil-carbamatos y organofosforados en alimentos y bacterias lácticas en cerveza”. (REF. AGL2002-01181)



A la gente que durante todos estos años ha pasado por el laboratorio (ahora el laboratorio 204). De todos he aprendido algo valioso. Gracias por su ánimo, su compañerismo y su amistad.

A Antonio, por sacar siempre un poquito más de mí, incluso cuando yo me negaba. A Yolanda por su ayuda, su consejo y su paciencia conmigo. Gracias por todas las cosas que habéis hecho por mí.

A mis padres, que me lo han dado todo y me han hecho tal y como soy. A Ana, por su apoyo, por estar siempre a mi lado, por quererme de verdad.



## Resumen

El trabajo presentado en esta tesis doctoral profundiza sobre el fenómeno rugoso superficial y su contribución a la respuesta acústica del sensor resonador de cuarzo en medios líquidos. Su principal aportación se centra en el estudio de los parámetros geométricos que pueden representar de forma óptima la contribución rugosa sobre la impedancia acústica del sensor. Se propone un modelo semi-empírico del efecto rugoso basado en los resultados de este estudio. Otra de las aportaciones de la presente tesis se centra en el estudio detallado de uno de los modelos de rugosidad propuestos más recientemente: el modelo de Arnau. Este modelo plantea la posibilidad de modelar la rugosidad mediante una distribución de casquetes semi-esféricos. En esta tesis se propone una corrección de dicho modelo que permita incluir el efecto de interferencia entre casquetes. Esta corrección se emplea en el estudio del comportamiento del efecto rugoso en superficies aleatorias. Se ha demostrado que el efecto de la rugosidad de una superficie aleatoria en la impedancia acústica puede ser modelado por la respuesta de una superficie equivalente formada por una distribución regular de casquetes semi-esféricos sobre una superficie plana. Asimismo, se ha demostrado que los parámetros geométricos de esta superficie equivalente están linealmente correlacionados con la proyección de la superficie aleatoria real en la dirección del movimiento. Esta afirmación se ha comprobado mediante medidas experimentales con microscopio de fuerza atómica (AFM).

**Palabras Clave:** Piezoelectricidad, sensores de cuarzo, rugosidad, modo de cizalla en espesor.





## Resum

El treball presentat en aquesta tesi doctoral aprofundeix sobre el fenomen rugós superficial i la seua contribució en la resposta acústica del sensor ressonador de quars en medis líquids. La principal aportació es centra en l'estudi dels paràmetres geomètrics que poden representar de forma òptima la contribució rugosa sobre l'impedància acústica del sensor. Es proposa un model semi-empíric del efecte rugós basat en els resultats d'aquest estudi. Un altra de les aportacions de la present tesi es centra l'estudi detallat d'un dels models de rugositat proposats més recentment: el model d'Arnau. Aquest model planteja la possibilitat de modelar la rugositat mitjançant una distribució de casquets semiesfèrics. En aquesta tesi es proposa una correcció del model d'Arnau que permet incloure l'efecte d'interferència entre casquets. Aquesta correcció s'empra en l'estudi del comportament del efecte rugós en superfícies aleatòries. S'ha demostrat que l'efecte de la rugositat de una superfície aleatòria en l'impedància acústica pot ser modelat per la resposta d'una superfície equivalent formada per una distribució regular de casquets semiesfèrics sobre una superfície plana. Així mateix, s'ha demostrat que els paràmetres geomètrics d'esta superfície equivalent estan linealment correlats amb la projecció de la superfície aleatòria real en la direcció del moviment. Aquesta afirmació ha sigut comprovada mitjançant mesures experimentals fetes amb microscopi de força atòmica (AFM).

**Paraules Clau:** Piezoelectricitat, sensors de quars, rugositat, mode de cisalla en gruix.



## **Abstract**

The work introduced in this doctoral thesis deepens in the superficial rough phenomenon and its contribution to the acoustic response of the quartz crystal resonator in liquid medium. The main contribution is focused on the study of the geometric parameters that can represent in an optimum manner the effect of the roughness over the acoustic impedance of the sensor. A semi-empiric model of the rough effect based on the results of this study is proposed. Another contribution of this thesis is a detailed study of one of the models most recently proposed: the Arnau's Model. This model raises the possibility of modeling the roughness by means of a semi-spherical shells distribution. A correction for this model which includes the effect of the interference between shells is proposed in this doctoral thesis. This correction is employed in the behavioral study of the rough effect in random surfaces. It has been proved that the roughness effect of a random surface over the acoustic impedance can be modeled by the response of an equivalent surface made of a regular distribution of semi-spherical shells over a flat surface. Furthermore, it has been demonstrated that the geometric parameters of the equivalent surface are linearly correlated with the projection of the real random surface in the direction of the movement. This statement has been checked by means of experimental measurements with atomic force microscopy (AFM).

**Keywords:** Piezoelectricity, quartz sensors, roughness, thickness-shear mode



# Indice

Indice.....	i
<b>0. Estructura de la tesis .....</b>	<b>1</b>
<b>1. Introducción y Estado del Arte.....</b>	<b>3</b>
1.1 El cristal resonador de cuarzo.....	3
1.2 Evolución del Cristal de Cuarzo como Sensor .....	8
1.3 Descripción del modelo de líneas de transmisión (TLM).....	13
1.4 Fenómenos no considerados en la teoría general del cristal resonador de cuarzo en medios líquidos .....	18
1.5 Modelos de rugosidad.....	22
1.5.1 Modelos para rugosidad "fuerte" de Daikhin et Urbakh y Etchenique .....	23
1.5.2 Modelo para rugosidades suaves de Daikhin et Urbakh.....	25
1.5.3 Aplicación de los modelos de rugosidad Daikhin et Urbakh para la interpretación de resultados experimentales .....	27
1.5.4 Modelo de rugosidad de Arnau .....	29
<b>2. Objetivos.....</b>	<b>33</b>
<b>3. Aportación. Parte 1: Estudio del Modelo de Rugosidad de Arnau .35</b>	<b>35</b>
3.1 Introducción.....	35
3.2 Análisis Numérico .....	36
3.2.1 Análisis de la relación $R_L/X_L$ .....	36
3.2.2 Análisis de los valores absolutos de $R_L$ y $X_L$ .....	40
3.3 Comparación con los Modelos de rugosidad "fuerte" de Daikhin et Urbakh y Etchenique .....	47
3.4 Estudio del Término de Stokes .....	51
3.5 Comparación del Modelo de Arnau con simulaciones realizadas con el Método de los Volúmenes Finitos .....	52
3.6 Conclusión .....	56
<b>4. Aportación. Parte 2: Estudio de la rugosidad de un recubrimiento polimérico mediante el modelo de Arnau .....</b>	<b>57</b>
4.1 Introducción.....	57
4.2 Descripción del Experimento: Material y Métodos.....	58
4.3 Discusión .....	59

4.3.1 Densidad de Masa, Rugosidad Superficial y Eficiencia en Régimen Gravimétrico .....	60
4.3.2 Contribución de la Rugosidad sobre las Propiedades Viscoelásticas Efectivas del Recubrimiento.....	66
<b>5. Aportación. Parte 3: Corrección del modelo de rugosidad de Arnau mediante la aplicación de Condiciones Contorno Armónicas .....</b>	<b>73</b>
5.1 Introducción.....	73
5.2 Introducción al sistema de ecuaciones de Navier-Stokes .....	75
5.3 Planteamiento del problema .....	77
5.3.1 Soluciones periódicas fundamentales para la ecuación de Navier-Stokes .....	78
5.3.2 Aplicación de la técnica de Ewald en la búsqueda de una expresión analítica cerrada para el campo de velocidades .....	89
5.3.3 Cálculo de la fuerza de arrastre en la distribución de esferas..	93
5.4 Conclusiones.....	94
<b>6. Aportación. Parte 4: Modelado por medio del Método de los Elementos Finitos de una QCM.....</b>	<b>95</b>
6.1 Introducción.....	95
6.2 Determinación del software de simulación FEM .....	95
6.3 Modelado del cristal resonador de cuarzo en corte AT .....	96
6.4 Modos fundamentales del cristal de cuarzo.....	101
6.5 Respuesta en frecuencia del cristal de cuarzo.....	107
6.6 Conclusiones.....	112
<b>7. Aportación. Parte 5: Modelado mediante el método de los volúmenes finitos del efecto sobre la impedancia acústica de la rugosidad superficial .....</b>	<b>115</b>
7.1 Introducción.....	115
7.2 Fundamentos de la modelización.....	116
7.2.1 Diseño geométrico y mallado .....	117
7.2.2 Diseño temporal de la simulación .....	118
7.2.3 Ecuación de estado .....	118
7.2.4 Modelado de flujo.....	119
7.2.5 Condiciones de contorno .....	120
7.2.6 Estado inicial .....	121
7.2.7 Convergencia.....	121
7.2.8 Cálculo de resultados.....	122
7.3 Superficie plana .....	124
7.4 Esfera aislada.....	128
7.5 Superficie de casquetes.....	132

---

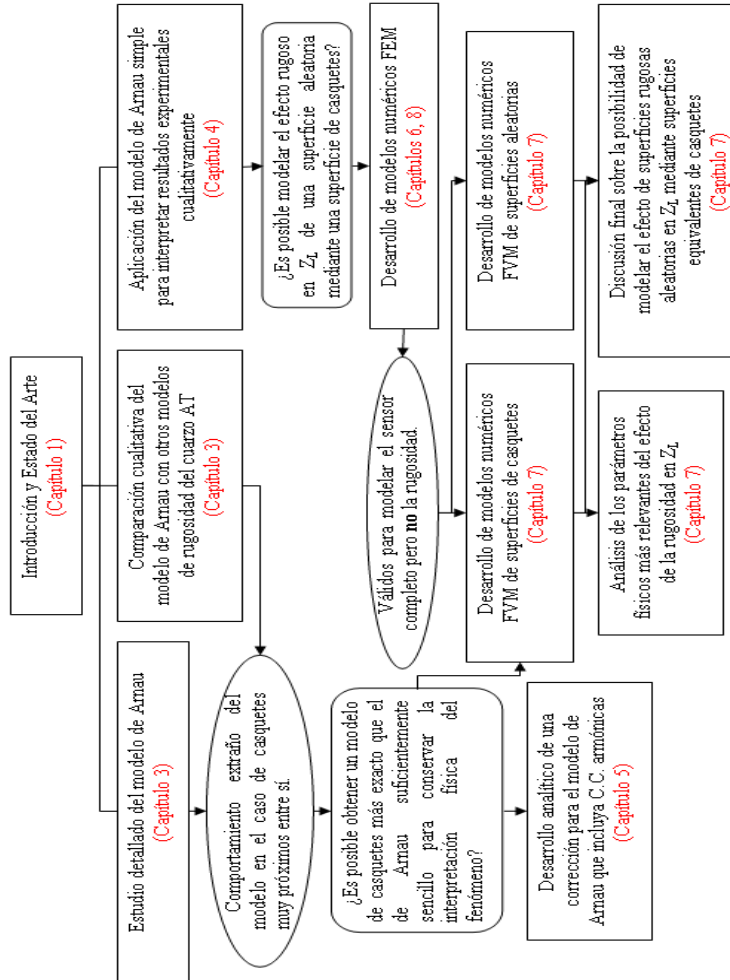
7.5.1 Interpretación física del efecto de interferencia entre casquetes	134
7.4.2 Identificación de los parámetros físicos geométricos más influyentes en la respuesta rugosa del sensor .....	138
7.6 Modelo semi-empírico del efecto sobre la impedancia acústica de la rugosidad superficial.....	151
7.7 Desarrollo de una corrección armónica semi-empírica del modelo de Arnau .....	153
7.7.1 Planteamiento de una descripción matemática del efecto interferente.....	153
7.7.2 Obtención de las funciones de variación de los coeficientes de corrección en función del radio de los casquetes.....	163
7.7.3 Estudio de la bondad de la aplicación inversa del modelo corregido de Arnau .....	166
7.8 Estudio de la respuesta de superficies rugosas aleatorias .....	169
7.8.1 Estudio de la respuesta rugosa en los modelos de superficies aleatorias.....	170
7.8.2 Extracción de características geométricas de las superficies rugosas aleatorias mediante el modelo corregido de Arnau .....	179
7.8.3 Extracción de características geométricas de las superficies rugosas aleatorias mediante la aplicación del modelo empírico y correlación con el modelo extendido de Arnau .....	184
7.8.4 Correlación de los parámetros extraídos mediante la aplicación del modelo corregido de Arnau con los parámetros geométricos reales AFM. ....	186
<b>8. Futuras líneas .....</b>	<b>193</b>
<b>9. Conclusiones .....</b>	<b>195</b>
<b>10. Bibliografía .....</b>	<b>197</b>
<b>Apéndice A. Deducción de los Modelos de Rugosidad de Daikhin y Etchenique .....</b>	<b>211</b>
A.1 Introducción.....	211
A.2 Descripción del modelo de rugosidad "fuerte" .....	212
A.3 Descripción del modelo rugosidad "suave" .....	227
<b>Apéndice B. Método de Ewald para acelerar la convergencia de los desarrollos en serie de Fourier .....</b>	<b>235</b>
B.1 Introducción .....	235
B.2 Desarrollo de Ewald.....	235

---

<b>Apéndice C. Introducción al Método de los Elementos Finitos .....</b>	<b>243</b>
C.1 Introducción .....	243
C.2 Características principales del método de los elementos finitos ..	244
C.3 Descripción general del método.....	245
C.4 Campos acoplados .....	248
C.5 Interacción líquido-estructura (FSI).....	249
C.5.1 Clasificación de los problemas FSI.....	249
<b>Apéndice D. Introducción al Método de los Volúmenes Finitos .....</b>	<b>251</b>
D.1 Introducción .....	251
D.2 Discretización de las ecuaciones de Navier-Stokes .....	251
D.2.1 Discretización de los términos transitorios.....	254
D.2.2 Funciones de forma .....	255
D.2.3 Discretización de los términos de difusión .....	256
D.2.4 Discretización del término gradiente de presión.....	257
D.2.5 Discretización del término de advección .....	257
D.3 Inclusión de los efectos de deformación en la malla .....	258
D.4 Errores de discretización.....	259
D.4.1 Difusión numérica .....	259
D.4.2 Dispersión Numérica .....	260
D.5 Malla .....	261
D.5.1 Generación de la malla .....	261
D.6 Condiciones de contorno .....	262
D.6.1 Entrada .....	262
D.6.2 Salida .....	263
D.6.3 Abierto .....	263
D.6.4 Muro .....	263
D.6.5 Plano de simetría .....	263
D.6.6 Plano periódico .....	264
D.7 Solución del sistema de ecuaciones algebraico .....	264
D.7.1 Construcción del sistema global de ecuaciones.....	264
D.7.2 Solución del sistema global ecuaciones.....	265
D.8 Convergencia .....	266
<b>Apéndice E. Modelado por medio del Método de los Elementos Finitos de un sensor LFE .....</b>	<b>267</b>
E.1 Introducción .....	267
E.2 Resultados experimentales y simulaciones .....	269
E.3 Conclusiones .....	277



## 0. Estructura de la tesis

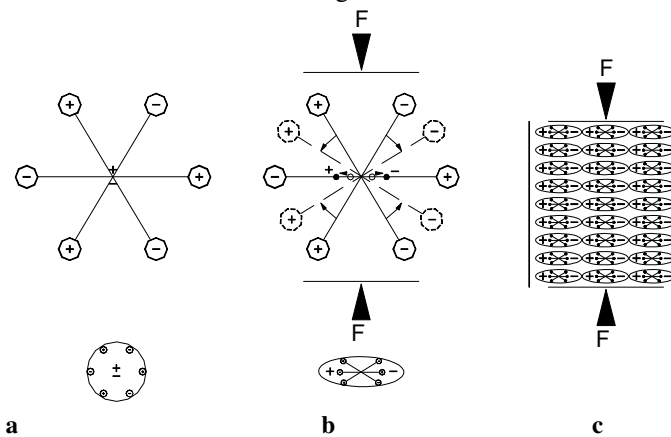




# 1. Introducción y Estado del Arte

## 1.1 El cristal resonador de cuarzo

El cristal de cuarzo se utiliza en numerosas y variadas aplicaciones como elemento resonante. El cuarzo es un material piezoeléctrico. Cuando un material de este tipo no es sometido a ningún esfuerzo externo, los centros de gravedad de las cargas positivas y negativas de cada molécula coinciden. De este modo, los efectos externos de dichas cargas positivas y negativas se cancelan mutuamente, dando lugar a una molécula eléctricamente neutra (Figura 1. 1 (a)). Cuando se ejerce una presión sobre el material su estructura reticular interna se deforma (Figura 1. 1 (b)), y en consecuencia los centros de gravedad de las cargas positivas y negativas se separan, generándose pequeños dipolos. Los polos que quedan enfrentados dentro del material se cancelan mutuamente, el resultado es la aparición de una carga ligada en las superficies del material (Figura 1. 1 (c)). Es decir, el material se polariza y en consecuencia aparece un campo eléctrico. Por tanto, se produce una transformación de energía mecánica, la empleada en la deformación del material, en energía eléctrica.

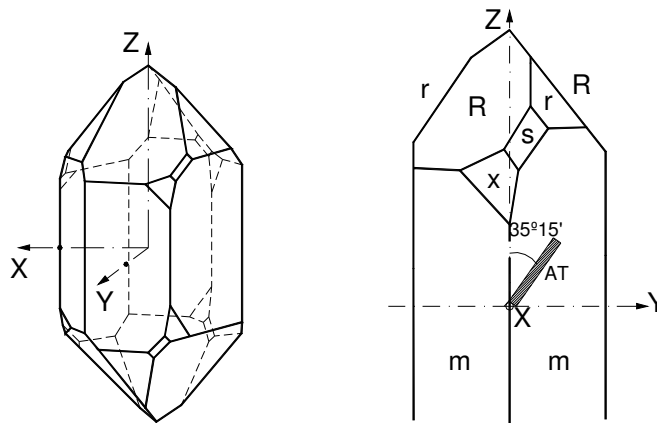


**Figura 1. 1.** Modelo molecular simplificado para explicar el efecto piezoeléctrico: **a** molécula sin perturbar, **b** molécula sujeta a un esfuerzo externo y **c** efecto de la polarización sobre las superficies del material [Arna04]

En la fabricación de los cristales resonadores de cuarzo, el material se corta en placas finas según determinadas orientaciones. Estos cortes proporcionan distintos tipos de resonadores, óptimos para aplicaciones con-

cretas. Según el corte, para que un cristal vibre en el modo deseado es necesario aplicar una diferencia de potencial alterna entre los electrodos del cuarzo en una determinada dirección. Las propiedades piezoeléctricas de este material hacen que la presencia de dicha diferencia de potencial provoque la deformación del mismo y por tanto su vibración. Se produce, en consecuencia, una transformación de energía eléctrica en mecánica que se cuantifica mediante el coeficiente de acoplamiento electromecánico  $K$ , el cual representa el porcentaje de energía eléctrica total aplicada que es almacenada en forma de energía elástica. En el caso de los cristales de cuarzo este coeficiente es suficientemente pequeño, siendo éste uno de los motivos que hacen del cuarzo uno de los materiales piezoeléctricos más empleados en determinadas aplicaciones como las que se tratan en este trabajo de investigación.

En la Figura 1. 2 se muestra una de las formas en que cristaliza el cuarzo en la naturaleza, lo hace en forma de prisma hexagonal. Cuando sobre esta estructura se practican cortes con una orientación de  $35.15^\circ$  respecto del eje  $Z$  se obtienen cristales de cuarzo en corte AT [Arnau99].



**Figura 1. 2.** Cristalización del cristal de cuarzo en forma de prisma hexagonal. Orientación del corte AT

El tipo de corte empleado define aspectos del resonador como el efecto que tiene la temperatura sobre la frecuencia de vibración o la cantidad de modos de vibración indeseados que se generan al aplicar el campo eléctrico. Con algunos tipos de corte es posible reducir el efecto de la temperatura sobre la frecuencia, así como los modos de vibración acoplados (no deseados).

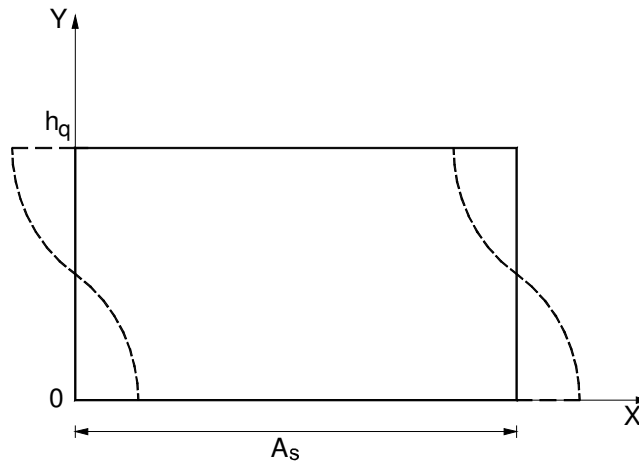
La frecuencia de un elemento resonador, como se verá más adelante, depende de propiedades físicas como el espesor, la elasticidad y la densidad del material. Estas propiedades varían con la temperatura, por tanto, parece claro que la frecuencia también tenga que depender de ella. Al coeficiente que determina esta variación se le denomina coeficiente de temperatura de frecuencia y se expresa habitualmente en  $\text{ppm}^\circ\text{C}$ . Los cortes que proporcionan un coeficiente de temperatura de frecuencia nulo en un amplio margen de temperaturas (entre  $20^\circ\text{C}$  y  $50^\circ\text{C}$ ), corresponden a los cortes AT y BT [Arnau99].

El tipo de corte también influye en la cantidad de modos de vibración acoplados diferentes al deseado. El ángulo de corte que proporciona menor cantidad de modos acoplados corresponde a los cortes AC y BC ( $31,46^\circ$  y  $-58,15^\circ$  respectivamente) [Arnau99]. En consecuencia, el acoplamiento entre modos de vibración no deseados para el corte AT será pequeño puesto que éste tan sólo difiere en  $3,5^\circ$  del AC, no ocurre lo mismo con el BT. Es por ello que el tipo de corte más adecuado, cuando pretende conseguirse el doble objetivo de disponer de resonadores de bajo coeficiente de temperatura y libres de otros modos de vibración diferentes al deseado, es el AT, siendo éste el corte de los cristales de cuarzo empleados en este trabajo de investigación.

Por otro lado, el cuidado en la geometría del resonador así como de sus electrodos permite eliminar también gran cantidad de modos acoplados e inarmónicos. Conforme el área de los electrodos se reduce, las respuestas de los modos inarmónicos disminuyen también. Por debajo de una cierta relación entre el diámetro del electrodo y el espesor del cristal conocida como número de Bechmann la respuesta del modo fundamental es esencialmente la que predomina [Mindlin67, Mindlin54, Mindlin51]. También es posible separar los modos inarmónicos de la frecuencia de vibración fundamental mediante procesos de contorneado, sin embargo, este tipo de procesos se hace impracticable en cristales de frecuencias comprendidas entre 10 y 100 MHz debido a que sus espesores son extremadamente finos. En este trabajo se han utilizado cristales de cuarzo en corte AT de 10 MHz en los que las técnicas de contorneado no son aplicables [Arnau99].

La Figura 1.3 representa la sección transversal de un cristal de cuarzo en corte AT circular. Debido a sus propiedades piezoeléctricas y a la orientación cristalina del corte AT, la aplicación de una diferencia de potencial entre dos electrodos depositados sobre las superficies de esta lámina y, por tanto, de un campo eléctrico en la dirección del espesor, resulta en una deformación en forma de cizalla del cristal como la que se muestra en la Figura 1.3. Cuando dicha diferencia de potencial es alterna la deformación de las partículas se produce con la misma frecuencia que el potencial aplicado. En estas condiciones se genera una onda acústica que se propaga en

la dirección del espesor, Y, mientras que el desplazamiento de las partículas del material es en la dirección transversal, X, generándose una onda de tipo transversal. Las ondas acústicas generadas se reflejan en las superficies superior e inferior de la lámina, en consecuencia, aparecen ondas incidentes y reflejadas propagándose en direcciones opuestas. La superposición de ondas que se propagan con la misma velocidad y amplitud pero en sentido contrario genera una onda estacionaria. Para que se produzcan este tipo de ondas deben cumplirse ciertas relaciones simples entre las dimensiones del resonador y la longitud de onda de la perturbación que se propaga por él. Por ello, sólo a ciertas frecuencias críticas, estas ondas interfieren de forma constructiva dando lugar a resonancias electromecánicas.



**Figura 1. 3.** Sección de una placa de cristal de cuarzo circular en vibración

En la Figura 1. 3 se muestra el perfil de la onda estacionaria que se genera para el primer armónico, los antinodos (puntos de máxima amplitud de vibración) están situados en las superficies del cristal, mientras que el nodo (punto en el que no se produce desplazamiento de las partículas) está situado a media distancia entre los antinodos. Como se desprende de dicha figura, la longitud de onda  $\lambda$  de la onda acústica en la resonancia correspondiente al primer armónico, es la mitad del espesor de la lámina de cuarzo  $h_q$ . El cristal puede ser excitado alrededor de diferentes armónicos, de modo que cada uno de ellos corresponde a un patrón de onda estacionaria de cizalla a lo largo del espesor del cristal. En cada uno de estos modos resonantes (armónicos) los antinodos están situados en ambas caras del cristal, por ello para el resto de armónicos debe cumplirse que el espesor del cristal sea un múltiplo impar de  $\lambda/2$ . Así:

$$h_q = n \frac{\lambda}{2} \text{ con } n = 1, 3, 5, \dots \quad (1.1)$$

Teniendo en cuenta la relación existente entre la longitud de onda y la frecuencia de una onda a través de la velocidad de la misma:

$$v = \lambda \cdot f \quad (1.2)$$

La Ec.(1.1) es equivalente a:

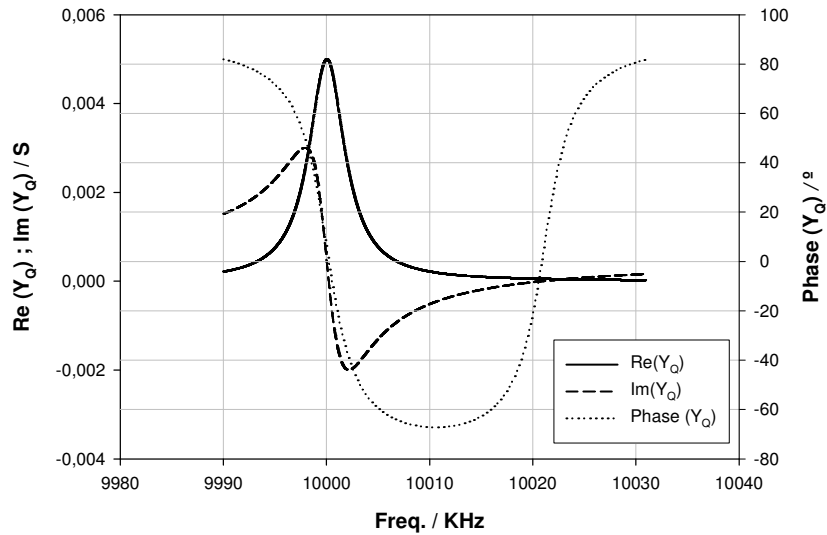
$$f = \frac{nv}{2} \frac{1}{h_q} = \frac{n}{2} \sqrt{\frac{c_{ij}}{\rho_q}} \frac{1}{h_q} = \frac{N}{h_q} n \quad (1.3)$$

La velocidad de propagación de la onda acústica es  $(c_{ij}/\rho_q)^{1/2}$ , donde  $c_{ij}$  es la constante elástica del material y  $\rho_q$  es su densidad. Al término  $N = 0.5(c_{ij}/\rho_q)^{1/2}$  se le denomina *constante de frecuencia*, siendo sus dimensiones Hz·m, su valor depende del tipo de corte. Para el corte AT el valor de la constante de frecuencia es 1664 kHz·mm, esto quiere decir que para obtener un cristal en corte AT vibrante a 10 MHz en su armónico fundamental, es necesario que la lámina de cuarzo tenga un espesor de 166.4  $\mu\text{m}$ . Cuando se trabaja a frecuencias más altas, el espesor se reduce y, por tanto, el cristal se vuelve más frágil; adicionalmente su factor de calidad empeora. Para frecuencias más bajas se pierde sensibilidad en la medida.

Como se ha indicado, la frecuencia del modo de vibración principal de un cristal de cuarzo en corte AT viene determinada por el espesor de la placa. Sin embargo, las frecuencias de los modos de vibración interferentes están determinadas por las dimensiones laterales de la placa. En este sentido, el hecho de dotar al cuarzo de una forma circular y de depositar los electrodos de forma concéntrica sólo en la zona central de la lámina, tiene por objeto evitar acoplamientos indeseados entre modos de vibración [Arnau99].

Los electrodos suelen ser capas de oro o plata depositadas sobre el cristal por evaporación, siendo su espesor del orden de unos pocos centenares de ángstrom. Este espesor es varios órdenes de magnitud inferior al espesor de la lámina de cuarzo, por ello su efecto sobre la frecuencia de resonancia suele tenerse en cuenta considerando el espesor de la lámina como un parámetro efectivo,  $h_q^{eff}$ , que ya tiene en cuenta las dimensiones de los electrodos. Esta aproximación es muy habitual en la literatura ya que simplifica el modelado del sensor de cuarzo, mientras que el error que introduce no es significativo [Behling99, Lucklum97-1, Lucklum98]. Por esta razón también se asumirá dicha aproximación en este trabajo.

Los valores del factor de calidad sin carga para las resonancias logradas con este tipo de resonadores llegan a ser del orden de 80.000. Debido a que la amplitud y la calidad de las resonancias se reducen al aumentar el número del armónico, suele trabajarse al primer armónico por ser éste el que mejores resultados proporciona [Buckin01]. En la Figura 1.4 se representa el espectro de admitancia de un cristal resonador de cuarzo típico en contacto con agua por una de las caras.



**Figura 1. 4.** Espectro de admitancia de un cristal resonador de cuarzo típico en contacto con agua por una de las caras

A continuación, se realiza una pequeña introducción histórica sobre el uso del cristal de cuarzo como sensor con el fin de plantear al lector el entorno de aplicación en el que se desarrolla este trabajo de investigación.

## 1.2 Evolución del Cristal de Cuarzo como Sensor

En las primeras aplicaciones de los cristales de cuarzo, éstos se usaban como patrones de referencia de frecuencia en los osciladores que generaban las portadoras de las emisoras de radio. Para controlar con precisión dichas frecuencias, se depositaban masas muy pequeñas sobre el cristal mediante un pincel marcador hasta que su frecuencia era la deseada. Esta técnica de ajuste de frecuencia se basaba en los resultados a los que llegó



Lord Rayleigh en 1945 [Rayleigh45], quien demostró que un pequeño cambio en la inercia de un sistema de vibración mecánico perturbaba su frecuencia de resonancia. Esta es la base del uso del cristal de cuarzo como microbalanza.

El uso del sensor de cuarzo como microbalanza es una de las aplicaciones más antiguas del cuarzo como sensor. Este uso se consolidó tras los trabajos de Sauerbrey que demostró, de forma experimental, que para películas finas uniformemente depositadas sobre el cristal, la desviación de frecuencia de resonancia del mismo era proporcional a la masa añadida [Sauerbrey59]. Sauerbrey estableció una relación matemática entre los incrementos de frecuencia y los de masa, la cual sólo es válida cuando la capa depositada sobre el antinodo del cristal es muy fina. En estas condiciones, el material depositado queda rígidamente acoplado a la superficie del cuarzo, sufriendo una deformación despreciable cuando es atravesado por la onda acústica; la consecuencia directa de ello, es que las propiedades elásticas del material no afectan a la frecuencia de resonancia del sensor, y las variaciones en la frecuencia del compuesto resonante son debidas exclusivamente a un efecto inercial. En otras palabras, es como si el cuarzo simplemente hubiera aumentado su espesor.

Estudios posteriores demostraron que la sensibilidad del cuarzo permitía determinar masas de 50 a 100 pg sobre 10 mm<sup>2</sup> [Stockbridge62]. Esta gran sensibilidad, del orden de un millón de veces superior a la que tienen los sistemas de microbalanza convencionales, es debida a la tremenda aceleración que sufren las partículas unidas rígidamente a la superficie del cuarzo.

Como se comentó en el epígrafe anterior, en la deformación en forma de cizalla en espesor el máximo desplazamiento de las partículas se produce en las superficies del cristal. La amplitud de vibración de las partículas del resonador depende del potencial aplicado al mismo, así como de su factor de calidad, y puede ser estimada del orden de ángstrom para tensiones aplicadas del orden de voltios. A pesar de la pequeña amplitud de esta vibración, las fuerzas que aparecen en una película depositada sobre su superficie son tremendamente grandes; concretamente, son proporcionales a la aceleración que sufren las partículas, la cual aumenta con el cuadrado de la frecuencia [Arnau99, Mecea96]. De este modo, la aceleración que sufren las partículas de dicha superficie resulta ser del orden de 10<sup>7</sup>g, siendo g la aceleración de la gravedad; esto significa que una partícula sometida a dicha aceleración pesaría 10<sup>7</sup> veces más sobre una balanza de cuarzo que sobre una balanza convencional.

La gran sensibilidad de la microbalanza de cuarzo, y la buena precisión obtenida para películas muy finas y uniformemente depositadas, permitió utilizar este cristal como elemento de monitorización de espesores de película delgada en sistemas de evaporación de metales al vacío. Los cambios

de frecuencia del resonador causados por una adición de masa podían ser relacionados mediante la ecuación de Sauerbrey.

En 1964, King ideó un detector selectivo y sensible de gases, para ello recubría el cristal con sustratos sensibles a determinados gases, la absorción del gas por parte del sustrato se traducía en un aumento de la densidad de masa superficial que podía ser cuantificada a partir de la frecuencia de resonancia empleando la ecuación de Sauerbrey [King64]. Esta idea se utilizó para detectar compuestos organofosforados y pesticidas en el ambiente [Guilbault81, Guilbault83, Guilbault85], explosivos [Tomita79] y agentes contaminantes [Edmonds80].

Cuando la masa de la película depositada es apreciable, la presunción de que la onda acústica no deforma el material es cada vez menos aceptable y la ecuación de Sauerbrey deja de ser válida. La realidad es que el resonador de cristal de cuarzo es sensible a las propiedades viscoelásticas del material bajo estudio, lo que limita su aplicación como microbalanza. La limitación de realizar una interpretación puramente inercial es evidente cuando el efecto viscoelástico resulta en un incremento en la frecuencia de resonancia que supera el efecto de la masa. En tales casos el modelo físico establecido por Sauerbrey para la monitorización de cambios de masa no es aplicable, por lo que se hizo necesario profundizar más en la caracterización del sensor y en la extracción de las propiedades físicas de los recubrimientos a partir de las magnitudes eléctricas medidas.

El origen de la limitación de la relación lineal establecida por Sauerbrey fue asociado al comportamiento elástico del recubrimiento por Miller y Bolef [Miller68]. Una formulación muy útil de dicho comportamiento fue presentada por Lu y Lewis en 1972, quienes desarrollaron una expresión compacta del cambio de frecuencia incluyendo la elasticidad del film, aunque no sus pérdidas [Lu72]. La dificultad del uso de dicha expresión estriba en la necesidad de conocer la impedancia acústica de los medios depositados sobre el sensor. Además, las contribuciones que tienen sobre la frecuencia un cambio de masa o un cambio en las propiedades viscoelásticas, en principio no pueden ser separadas de un modo simple con la medida exclusiva de la frecuencia. A partir de estos trabajos se hace patente que el término microbalanza aplicado al sensor de cuarzo es, probablemente, impreciso ya que en la frecuencia de resonancia del compuesto intervienen diferentes efectos.

Numerosos investigadores consideraron el uso del resonador en medios líquidos; sin embargo, descartaron esta idea basándose en el hecho de que la adición de un líquido en una de las caras del sensor resultaría en un aumento excesivo de las pérdidas debido al efecto viscoso de la solución, y en consecuencia, que esto provocaría el cese de la oscilación del cristal. Sin embargo, la amplitud de la onda de cizalla transmitida hacia el líquido

se reduce exponencialmente con la distancia, y por tanto la profundidad de penetración finita de dicha onda limita el efecto de la carga.

En 1980, Konash y Bastiaans demostraron que era posible mantener la estabilidad de un oscilador controlado por cuarzo cuando éste se hallaba en contacto con un medio líquido [Konash80]. Este estudio abría la posibilidad de utilizar el cristal de cuarzo como sensor en medio fluido. Sin embargo, se hacía necesario un estudio más detallado de los fenómenos físicos que determinaban las características resonantes del cristal de cuarzo en corte AT en contacto con un líquido. Esto permitiría obtener un modelo más preciso que cuantificara el efecto de las propiedades físicas del medio sobre las características vibrantes del compuesto. En 1985, Kanazawa y Gordon obtuvieron, a partir de un modelo físico, la relación entre la variación de la frecuencia de resonancia del cristal y las propiedades viscosas del medio líquido en contacto [Kanazawa85-1, Kanazawa85-2].

El hecho de que los sistemas electrónicos basados en sensores de cuarzo pudieran operar en medios líquidos, junto con el desarrollo de modelos matemáticos como el introducido por Kanazawa y Gordon, ofrecieron la posibilidad de emplear cristales de cuarzo en procesos de detección que se desarrollaban mejor en medios líquidos que en gaseosos. De entre todas las aplicaciones del sensor en medio líquido, una de las que más expectativas ha generado es el uso del cristal de cuarzo como biosensor. Un cristal de cuarzo recubierto con un polímero, o al que se le ha modificado bioquímicamente su superficie, constituye una interfaz biológica disponible para ser expuesta posteriormente a complejos biomoleculares en disolución acuosa. Los biosensores basados en sistemas de cuarzo se han convertido en una herramienta adecuada para medidas de biofluidos in situ, en particular para la detección on-line de reacciones inmunológicas [Hengerer99, Sakti00] o bioelectroquímicas de enzimas redox [Buttry91].

Muchos de los materiales estudiados con dispositivos de onda acústica no están rígidamente acoplados a la superficie del electrodo, si no que manifiestan comportamientos viscoelásticos que siguen el modelo de admitancia propuesto por Reed y Kanazawa [Reed90] o variantes del mismo. Este es el caso de los polímeros, cuyas propiedades físicas y químicas los han convertido en uno de los materiales más empleados en aplicaciones basadas en cristales de cuarzo. Los motivos del gran auge en el uso de este sensor para el estudio del comportamiento de los polímeros son: a) que para llevar a cabo su caracterización, la cantidad de material que se necesita es muy poca, esto permite estudiar el comportamiento dinámico de capas finas en alta frecuencia; b) la poca cantidad de material que debe depositarse sobre el sensor facilita, entre otras cosas, que se tenga un buen control sobre la temperatura de toda la muestra, lo cual es una gran ventaja, ya

que la temperatura es uno de los factores que más afecta a parámetros como la viscosidad.

Aplicaciones del cristal de cuarzo que hacen uso de polímeros, son las que emplean arrays de sensores como narices electrónicas [DiNatale00]. También se han extendido mucho aquellas en las que se usa el cuarzo para detectar las propiedades viscoelásticas de muestras; este es el caso de los recubrimientos poliméricos que sirven de protección de los objetos que recubren. En estos casos, es mucho más importante conocer la rigidez de dicha capa en lugar de su espesor [Wolff00], la cual, en ocasiones difiere de la que tendría un volumen mayor del mismo polímero. Otra aplicación en alza del cristal de cuarzo como sensor es la microbalanza electroquímica, en la que uno de los electrodos del resonador es empleado como electrodo de referencia en una celda electroquímica de tres electrodos [Kanazawa93, Oyama95, Hillman01, Calvo97].

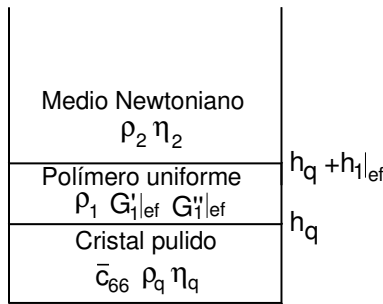
Los sensores de cuarzo también se utilizan como un método alternativo para estudiar el comportamiento de los geles de partículas [Buckin01]. Los geles de partículas disponen de una pequeña región de deformación en la que sus parámetros viscoelásticos son constantes, este tipo de materiales puede romperse fácilmente ante esfuerzos externos elevados. Por ello, las medidas de sus propiedades viscoelásticas deben llevarse a cabo mientras el material sufre deformaciones pequeñas, las cuales están habitualmente por debajo de los límites de precisión de los medidores convencionales. Los desplazamientos de las deformaciones de cizalla generadas mediante esta técnica son extremadamente pequeñas, del orden de ángstroms, lo que corresponde a los límites más bajos de los instrumentos de medida de propiedades clásicos [Buckin01]. Por ejemplo, para un cristal que vibre a 5MHz se producen amplitudes de desplazamientos medias en la superficie del cristal del orden de 0.5nm, estando el máximo de amplitud situado justo en el centro del cristal donde los desplazamientos que se producen son del orden de 1nm. Técnicamente la amplitud de excitación que puede conseguirse es del orden de 0.1nm, que corresponde al tamaño de los átomos y de los grupos atómicos de moléculas, y que es menor que el tamaño característico de los agregados moleculares [Buckin01].

La gran cantidad de nuevas ideas acerca del uso de este tipo de sensores, hace necesario desarrollar equipos electrónicos de medida más avanzados, y al mismo tiempo nuevos modelos matemáticos que establezcan las relaciones entre los parámetros eléctricos que proporcionan dichos sistemas de medida, y las propiedades físicas de los materiales depositados sobre el sensor. A partir del modelo de Reed y Kanazawa puede desarrollarse la teoría general de un compuesto resonante formado por diferentes capas de espesores diversos y con distintas impedancias características [Grans-

taff94]. Esta teoría general puede ser de gran ayuda en la interpretación de los resultados experimentales.

### 1.3 Descripción del modelo de líneas de transmisión (TLM)

En este apartado abordaremos la teoría general de un compuesto resonante para representar la respuesta del sensor de cuarzo. Para ello, centraremos la atención en la descripción del llamado modelo de líneas de transmisión (TLM, Transmission Line Model) [Granstaff94, Jiménez04-2]. Éste es el modelo matemático unidimensional más completo de los que se han propuesto hasta la fecha para representar la respuesta de un compuesto resonante como el de la Figura 1. 5.



**Figura 1. 5.** Modelo de 3 capas de un sensor de cuarzo: cuarzo+capa de recubrimiento uniforme+medio semi-infinito

El TLM proporciona la admitancia eléctrica del sensor [Granstaff94, Jiménez04-2].

A continuación, se analizarán más en detalle sus fundamentos teóricos. La admitancia eléctrica del sensor viene descrita por (1.4):

$$Y = \frac{1}{Z} = j\omega C_0^* + \frac{1}{Z_m} \tag{1.4}$$

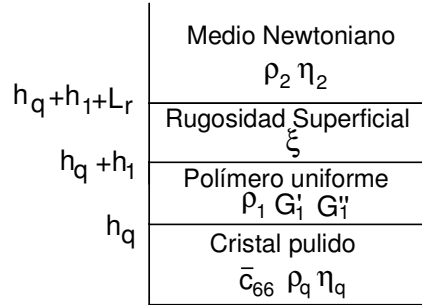
donde  $C_0^* = C_0 + C_{ex}$ , siendo  $C_0$  la capacidad estática y  $C_{ex}$  una capacidad que aparece en paralelo con el cristal y que modela las capacidades parásitas de las conexiones, etc.  $Z_m$  es la impedancia de la rama dinámica, que puede expresarse como una contribución aditiva de la rama dinámica del sensor en un estado de no perturbación,  $Z_m^0$ , y un término asociado con la carga,  $Z_m^L$ , de la forma:

$$Z_m = \frac{1}{j\omega C_0} \left( \frac{\frac{\alpha_q}{K^2}}{2 \tan \frac{\alpha_q}{2}} - 1 \right) + \frac{1}{\omega C_0} \frac{\alpha_q}{4K^2} \frac{Z_L}{Z_{cq}} \frac{1}{j \frac{Z_L}{Z_{cq}} - 1 - \frac{\alpha_q}{2 \tan \frac{\alpha_q}{2}}} = Z_m^0 + Z_m^L \quad (1.5)$$

donde  $K$  es el factor de acoplamiento electro-mecánico complejo para un cuarzo con pérdidas,  $\alpha_q$  es la fase compleja de la onda acústica que atraviesa el cuarzo,  $Z_{cq}$  es la impedancia característica del cuarzo y  $Z_L$  es la impedancia acústica de carga. Los parámetros  $C_0$ ,  $K$ ,  $\alpha_q$  y  $Z_{cq}$  dependen de las propiedades intrínsecas del cuarzo y del espesor del cristal, del área del electrodo y de las pérdidas del cristal de cuarzo. Los valores efectivos del espesor del cristal  $h_q^{ef}$ , la capacidad estática  $C_0^{ef}$ , las pérdidas del cristal de cuarzo  $\eta_q^{ef}$  y la capacidad paralela externa  $C_{ex}$ , deben ser obtenidas mediante la calibración del sensor. Por otro lado, las propiedades físicas y geométricas de las capas depositadas sobre el cristal están incluidas en la impedancia acústica de carga:

$$Z_L = Z_1^c \frac{Z_2 + Z_1^c \tanh(\gamma_1 h_1)}{Z_1^c + Z_2 \tanh(\gamma_1 h_1)} \quad (1.6)$$

donde  $Z_1^c = (\rho_1 G_1)$  es la impedancia característica del recubrimiento, siendo  $G_1 = G_1 + jG_1'$  el módulo complejo de cizalla y  $\rho_1$  la densidad;  $\gamma_1 = j\omega \rho_1 / Z_1^c$  es el factor de propagación de onda complejo en el recubrimiento,  $h_1$  el espesor del recubrimiento y  $Z_2$  la impedancia acústica de carga vista desde la superficie del mismo.  $Z_2$  corresponde, en el modelo de tres capas de la Figura 1. 5, a la impedancia característica del medio semi-infinito y vale  $Z_2 = (\rho_2 G_2)$  con  $\rho_2$  y  $G_2$  la densidad y el módulo complejo de cizalla del segundo medio respectivamente.  $Z_2$  corresponde, en el modelo de 4 capas de la Figura 1. 6 a la impedancia acústica terminal “vista” desde la superficie superior de la capa que representa el polímero uniforme. Existen algunos modelos para  $Z_2$  que serán comentados más adelante [Etchenique00, Bund02, Arnau05, Ochoa04, Daikhin02].



**Figura 1. 6.** Modelo de 4 capas de un sensor de cuarzo: cuarzo+capa de recubrimiento uniforme+capa rugosa+medio semi-infinito

Cuando  $Z_L$  es pequeña comparada con la impedancia acústica del cristal de cuarzo  $Z_{cq}$  ( $8.849 \cdot 10^6 \text{ kg m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  para un cristal en corte AT), se verifica la llamada “condición de impedancia de carga superficial pequeña”, y de la ecuación (1.5) se puede extraer la siguiente relación [Lucklum04]:

$$Z_L = Z_{cq} \frac{4K^2 \omega C_0}{\pi} \Delta Z_m \quad (1.7)$$

donde  $\Delta Z_m = Z_m - Z_m^q$  es la variación de la impedancia eléctrica dinámica tomada como la diferencia entre la impedancia dinámica del dispositivo cargado y sin cargar.

Esta aproximación nos permite relacionar directamente la impedancia acústica de carga  $Z_L$  con dos valores directamente medibles:

- La variación de la frecuencia de resonancia serie dinámica  $\Delta f_s$ , en el valor de admitancia en fase, que se toma normalmente como la diferencia de frecuencia entre el máximo de conductancia para el dispositivo cargado y sin cargar.
- La variación en la resistencia dinámica  $\Delta R_m$ , tomada como la diferencia entre los máximos valores de la conductancia del dispositivo cargado y sin cargar.

Estas relaciones se expresan mediante las siguientes ecuaciones:

$$R_L = Z_{cq} \frac{4K^2 \omega C_0}{\pi} \Delta R_m \quad (1.8)$$

$$X_L = -\frac{\pi Z_{cq}}{f_0} \Delta f_s \quad (1.9)$$

Cuando  $Z_2 \ll Z_1^c$  la impedancia acústica de carga de la ecuación (1.6) se puede aproximar por:

$$Z_L = Z_2 + Z_1^c \tanh(\gamma_1 h_1) \quad (1.10)$$

de forma que la impedancia acústica de carga total resulta de la contribución aditiva de la impedancia acústica del recubrimiento y de la impedancia acústica del líquido que se sitúa sobre éste. Para capas finas  $h_1 \rightarrow 0$ , y rígidas ( $G_1'' = 0$ ), la ecuación anterior se reduce a  $Z_L = Z_2 + j\omega\rho_1 h_1$ , que aplicada a las ecuaciones (1.8) y (1.9) reproduce el conocido modelo de Martin [Martin91]. Este modelo propone que la variación de frecuencia es debida a la adición directa de las contribuciones del líquido (relación de Kanazawa [Kanazawa85-1]) y de la densidad superficial de masa del recubrimiento,  $m_s = \rho_1 h_1$ , (relación de Sauerbrey [Sauerbrey59]). Además, relaciona la variación de la resistencia dinámica solamente al efecto de pérdidas debido al líquido.

$$\Delta f_s |_{liq+recubrim} = \Delta f_s |_{liq} + \Delta f_s |_{recubrim} = -\frac{f_0}{\pi Z_{cq}} \sqrt{\frac{\rho_2 \eta_2 \omega}{2}} - C_{SB} \rho_1 h_1 \quad (1.11)$$

Para un cristal de cuarzo de 10 MHz y corte AT la constante de Sauerbrey es:  $C_{SB} = 2f_0/Z_{cq} = 226.01 \text{ Hz cm}^2$ .

En el contexto de la Figura 1. 5, cuando no se pueden realizar suposiciones sobre la capa de recubrimiento, es decir, cuando no es razonable considerar un comportamiento Sauerbrey del recubrimiento o no se puede aplicar la aproximación de “impedancia de carga superficial pequeña”, el modelo apropiado para caracterizar la respuesta eléctrica del sensor vuelve a ser el TLM dado por la ecuación (1.4). En este caso, las propiedades del recubrimiento deben ser extraídas a partir de medidas eléctricas. Para el modelo de tres capas de la Figura 1. 5, y asumiendo que los parámetros del cristal mencionados anteriormente:  $h_q^{ef}$ ,  $C_0^{ef}$ ,  $\eta_q^{ef}$  y  $C_{ex}$ , pueden ser obtenidos mediante la calibración del sensor, existen siete incógnitas, cuatro de ellas corresponden al recubrimiento ( $h_1$ ,  $\rho_1$ ,  $G_1'$ ,  $G_1''$ ) y las otras tres al medio semi-infinito ( $\rho_2$ ,  $G_2'$ ,  $G_2''$ ). Estas incógnitas pueden ser reducidas a cuatro si las tres propiedades del segundo medio son conocidas. Las cuatro incógnitas restantes pueden ser reducidas a tres ( $m_s$ ,  $Q_1$  y  $|Z_1^c|$ ) de la siguiente forma:

$$Z_1^c = \sqrt{\rho_1 G_1} = \sqrt{\rho_1 |G_1|} e^{j\frac{\delta_1}{2}} = |Z_1^c| e^{j\frac{\delta_1}{2}} \quad (1.12)$$



$$\gamma_1 h_1 = j\omega \frac{m_s}{Z_1^c} = j\omega \frac{m_s}{|Z_1^c|} e^{-j\frac{\delta_1}{2}} \quad (1.13)$$

donde  $\delta_1 = \arctan(G_1'' / G_1')$  y  $m_s = \rho_1 h_1$ .

Así, siempre que las propiedades del medio semi-infinito sean conocidas, el mínimo número de incógnitas es tres. En estas condiciones, para aquellos sistemas que sólo proporcionan dos datos experimentales (la frecuencia de resonancia del sensor y una magnitud ligada al efecto de amortiguación debido a la carga), como los típicos circuitos basados en osciladores, el problema de la extracción de parámetros está claramente indeterminado (dos ecuaciones y tres incógnitas). Es posible aumentar el número de ecuaciones manteniendo constante el número de incógnitas si se mide la respuesta de la admitancia a varias frecuencias cercanas a la resonancia y se considera que las propiedades viscoelásticas del recubrimiento permanecen constantes con la frecuencia.

Los espectros de admitancia experimentales medidos con analizadores de redes o de impedancia nos ofrecen más de dos datos, en realidad, tantos como puntos representados en la pantalla. Todos estos puntos son un conjunto de condiciones que deben ser satisfechos por el modelo TLM. Bajo estas condiciones, el problema de la extracción de parámetros puede ser, en principio, determinado aunque no trivial. Por tanto, puede concluirse que resolver el problema de extracción de parámetros planteado no es una tarea sencilla. Un resumen de las diferentes estrategias seguidas para afrontar el problema anteriormente descrito se puede encontrar en [Jiménez04-2] [Jiménez06-1].

Recientemente, se ha desarrollado un algoritmo que permite la extracción de las tres propiedades del recubrimiento ( $m_s$ ,  $Q_l$  y  $|Z_l^c|$ ) bajo condiciones “experimentalmente ideales” que son aquellas obtenidas realizando simulaciones con el modelo TLM a partir de propiedades físicas del recubrimiento conocidas. Se llaman así porque se evitan los errores experimentales debidos al equipo de medida a partir de una porción del espectro de admitancias alrededor de la resonancia. El algoritmo incluye la opción de realizar un análisis del error de las propiedades extraídas en función del error de ajuste entre los datos experimentales de admitancia y los datos proporcionados por el modelo TLM. Este hecho permite establecer las condiciones apropiadas para la aplicación del algoritmo de acuerdo con los datos experimentales concretos. El algoritmo también permite incluir restricciones adicionales, como el valor de algunas magnitudes obtenidas por medio de técnicas de medida alternativas o condiciones basadas en criterios físicos. En este caso, es posible realizar un análisis del error de las

propiedades extraídas en función del error estimado para los valores de las magnitudes obtenidas mediante técnicas alternativas [Jiménez04-2, Jiménez06-1].

#### **1.4 Fenómenos no considerados en la teoría general del cristal resonador de cuarzo en medios líquidos**

El nuevo abanico de aplicaciones que se abre para el uso del sensor de cuarzo en medios líquidos es enorme y prometedor [Dewar06, Liess97, Kuroiwa02, Hengerer99, Sakti00]. En estos momentos se precisa, sin duda, de un mejor entendimiento de los mecanismos de transducción del resonador en medios líquidos. Fenómenos no considerados previamente en los modelos físicos, tales como el deslizamiento de la capa situada sobre el electrodo [Ferrante94, Mchale04], la rugosidad de la superficie del sensor [Martín93-1] o la no homogeneidad de la distribución de amplitudes en la superficie del cuarzo [Mecea89, Lu04] cobran, ahora, mucha mayor relevancia.

En este trabajo, centraremos la atención en el análisis de los efectos interfaciales rugosos. Cuando una superficie rugosa en contacto con un líquido oscila, el movimiento del líquido generado por la oscilación es mucho más complicado que en el caso de una superficie lisa (pulida) donde el flujo que se crea es laminar y paralelo a dicha superficie. En teoría, en el caso rugoso, suceden una serie de efectos de acoplamiento en el interfaz entre la onda acústica en el cuarzo y el fluido, los cuales derivan en la aparición de velocidades de flujo perpendiculares a la superficie con la consiguiente posibilidad de creación de ondas a compresión [Wehner04, Wondraczek04]. Éste mecanismo se puede suponer intuitivamente. Debido a las irregularidades en la superficie el flujo paralelo se desvía en la dirección vertical. Según Wehner, bajo ciertas circunstancias es posible que estas ondas a compresión generen flujo no laminar [Wehner04]. Además se pueden producir otros efectos como: atrapamiento de líquido en cavidades o poros [Liess97, Zhang98].

En algunas publicaciones se estudia conjuntamente el efecto rugoso y el efecto de otros fenómenos normalmente no tenidos en cuenta, con el consecuente aumento de la complejidad en la interpretación de los resultados experimentales. McHale investiga el efecto del deslizamiento de la primera capa de líquido situada sobre el sensor ('slip condition') para una superficie rugosa [Mchale04]. Otros autores estudian el llamado 'ángulo de contacto', relacionado con la 'mojabilidad' de las superficies [Theisen04, Yang93]. La 'mojabilidad' de una superficie viene definida por su grado

de afinidad a los medios líquidos que se ponen en contacto con ésta. Thesisen argumenta que según las propiedades de ‘mojabilidad’ de la superficie rugosa del sensor para ciertos líquidos, se pueden formar cavidades de gas atrapado en el interfaz sólido-líquido alterando consecuentemente la respuesta del resonador [Theisen04].

Existen publicaciones en las que se describe una diferencia entre los valores experimentales de las variaciones de frecuencia y resistencia dinámicas en resonadores en contacto con líquidos [Dewar06, Kuroiwa02, Rechendorff07] y los valores teóricos esperados predichos por la ecuación de Kanazawa y Gordon [Kanazawa85-1]. Estas diferencias se han relacionado con la rugosidad del cristal [Martin93-1]. A pesar del considerable volumen de literatura que se ha escrito sobre el tema, tanto experimental como teórico, no se ha llegado a obtener una explicación cuantitativa completamente satisfactoria de los fenómenos observados [Beck92, Bruckenstein94]. Normalmente, para explicar el incremento en la variación en la frecuencia de resonancia, respecto de los valores teóricos esperados, se interpreta que existe una contribución inercial adicional debida al líquido atrapado en la superficie rugosa [Beck92]. Por otro lado, se supone que el aumento en las pérdidas es debido al crecimiento de la fricción efectiva entre el líquido y la superficie en la interfase rugosa [Yang93].

Ciertos autores tratan de aprovechar los efectos rugosos como un nuevo mecanismo de transducción que permita el uso del cristal resonador de cuarzo en aplicaciones innovadoras. Kuroiwa propone el uso de cristales con superficies rugosas para implementar sensores de humedad ambiental [Kuroiwa02]. Liess y Bruckenstein proponen el uso de cristales rugosos para discriminar la medida de densidad de la medida de viscosidad en medios líquidos [Liess97, Bruckenstein94].

Todos los fenómenos relacionados con las interacciones en el interfaz rugoso sólido-líquido son dependientes de la magnitud conocida como profundidad de penetración de la onda en el medio líquido  $\delta$ , descrita en la ecuación (1.14), donde  $\eta$ ,  $\rho$  y  $\omega$  son respectivamente: la viscosidad, la densidad del medio líquido y la pulsación de la oscilación del cristal de cuarzo:

$$\delta = \sqrt{\frac{2\eta}{\rho\omega}} \quad (1.14)$$

Para un cristal resonador de cuarzo en contacto con agua y oscilando a 10MHz,  $\delta$  tiene un valor de unos 178nm. Una superficie debe tener características cuyas dimensiones sean pequeñas en comparación con  $\delta$  para ser considerada hidrodinámicamente suave o lisa. Si la superficie tiene defectos, poros, valles, montículos o cualquier otra variación con respecto a la

superficie plana ideal del mismo orden de magnitud que  $\delta$  se considera rugosa. En estos casos es preferible estudiar la impedancia acústica superficial definida en la ecuación (1.6), con el fin de evaluar los efectos rugosos, en lugar de estudiar la impedancia eléctrica que podemos medir directamente del sensor, debido a que ésta es función de parámetros geométricos propios de cada cristal resonador de cuarzo [Martin93-1]. Una expresión más adecuada para nuestros propósitos de esta impedancia acústica superficial es la siguiente:

$$Z_L = \frac{T_{xy}}{v_x} \quad (1.15)$$

En la ecuación (1.15), la impedancia acústica superficial esta definida como el cociente entre la fuerza estacionaria por unidad de área en la superficie del sensor en la dirección del movimiento ( en este caso  $x$ ), y la proyección de la velocidad del fluido en esa misma dirección.  $Z_s$  es una magnitud compleja, cuya parte real se corresponde con la tensión superficial en fase con la velocidad, y representa la potencia disipada en la superficie. La parte imaginaria es la tensión superficial desfasada  $90^\circ$  con la velocidad y representa la energía almacenada en el interfaz.

En el caso de una superficie perfectamente plana oscilando en contacto con un medio Newtoniano semi-infinito, la velocidad del fluido puede describirse según la ecuación (1.16) [Martin93-1, Landau91]:

$$v_x(y) = v_{x0} e^{-[(1+j)/\delta]y} \quad (1.16)$$

La expresión de la tensión superficial en la dirección de la velocidad sobre la superficie plana será, para este mismo medio Newtoniano, dada por la ecuación (1.17) [Martin93-1]:

$$T_{xy} = -\eta \frac{dv_x}{dy} = \frac{\eta v_{x0}}{\delta} (1+j) \quad (1.17)$$

Por lo tanto, la expresión de la impedancia acústica viene dada por la ecuación (1.18).

$$Z_L = \sqrt{\frac{\omega \rho \eta}{2}} (1+j) \quad (1.18)$$

Nótese que la fuerza por unidad de área y la velocidad del fluido están desfasadas  $45^\circ$  y que, como consecuencia, la parte real y la parte imaginaria de la impedancia acústica son iguales para el caso de una superficie plana. Si la superficie es rugosa, en cambio, esta igualdad puede no ser

cierta. Es por tanto conveniente, prestar atención a la relación  $\text{Re}(Z_s)/\text{Im}(Z_s)$  si pretendemos estudiar la posible aparición de efectos rugosos.

En la ecuación (1.18) puede observarse que  $Z_{L_s}$  es una función lineal del término  $(\rho\eta)^{1/2}$  para superficies planas. Los experimentos llevados a cabo por Martin y Frye [Martin93-1], parecen confirmar que en el caso rugoso también existe una dependencia lineal con  $(\rho\eta)^{1/2}$ . Además, aparece un nuevo término aditivo que es proporcional a  $\rho$ . Este efecto es mucho más significativo en la parte imaginaria que en la parte real de  $Z_L$  [Rechen-dorff07]. Numerosos autores [Schumacher85, Bund02, Bund04] relacionan este término con la masa equivalente de líquido atrapada en las cavidades que forman la rugosidad y que oscilan sincrónicamente con la superficie. Hemos de reseñar que no sólo el líquido atrapado en las cavidades contribuye a incrementar la parte imaginaria de  $Z_L$ , sino que el líquido desplazado por los salientes rugosos también aporta energía en forma de masa virtual producida por los gradientes de presión oscilatorios [Landau91].

Por otra parte, el hecho de que en los experimentos de Martin y Frye se pueda ajustar un modelo empírico en el que se supone una dependencia lineal de la impedancia acústica con  $(\rho\eta)^{1/2}$ , predispone a pensar que, para el caso de configuraciones típicas de cristales resonadores de cuarzo con superficies rugosas, no se producen efectos no lineales en la interacción sólido-líquido. Otra confirmación a esta hipótesis es el estudio teórico del valor del número de Reynolds. El número de Reynolds relaciona las fuerzas inerciales con las fuerzas viscosas en un fluido. Para valores altos de este número, en torno a 2000, las fuerzas inerciales dominan y empiezan a producirse efectos-no lineales y por tanto flujo turbulento [Martin93-1, Wehner04]. La expresión del número de Reynolds viene dada en nuestro problema por la ecuación (1.19), donde  $u_{x0}$  es la amplitud del desplazamiento de las partículas del cristal de cuarzo en su superficie, que depende de la potencia que se le suministre al resonador y tiene un valor típico, en contacto con agua, inferior a una decena de Angstroms:

$$R_e \equiv \frac{\delta v_{x0} \rho}{\eta} = \left( \frac{2\omega\rho}{\eta} \right)^{\frac{1}{2}} u_{x0} \quad (1.19)$$

Para una frecuencia de oscilación de 10 MHz, y en contacto con agua, el valor del número Reynolds es del orden de  $10^{-4}$ . Este valor extremadamente pequeño predice que no se producirá flujo turbulento ni siquiera en el caso de rugosidades muy pronunciadas.

La ausencia de flujo turbulento en las inmediaciones de la superficie rugosa permite el estudio y desarrollo de modelos matemáticos de compleji-

dad razonable que intenten predecir la respuesta de un cristal resonador de cuarzo en un medio líquido.

## 1.5 Modelos de rugosidad

Como se ha comentado en el apartado anterior, las características del fenómeno rugoso en el ámbito de los cristales resonadores de cuarzo en medio líquido permiten abordar su problemática mediante una aproximación matemática. Existen diversos modelos que simulan los efectos de la rugosidad en la respuesta del sensor [Schumacher85, Daikhin96, Daikhin97, Daikhin02, Etchenique00, Urbakh94-1, Urbakh94-2, Urbakh98]. Asimismo, se han publicado trabajos en los que se aplican dichos modelos con el fin de interpretar ciertos fenómenos experimentales observados [Bund02, Bund04, Rechendorff07]. Sin embargo, solamente se han obtenido relaciones matemáticas con significado físico directo en modelos muy simples y limitados [Schumacher85], mientras que en otros modelos más complejos y potentes [Daikhin96, Etchenique00, Urbakh94-2], las relaciones matemáticas obtenidas, a pesar de predecir mejor los resultados experimentales, no permiten una interpretación simple de las diferentes contribuciones físicas de la superficie rugosa en la respuesta del sensor.

Los modelos de rugosidad de Daikhin et Urbakh y Etchenique son los más completos que existían hasta la fecha. Mientras que Daikhin et Urbakh desarrollan dos modelos diferenciados de rugosidad, uno para la llamada rugosidad "suave" [Urbakh94-2] y otro para la rugosidad "fuerte" [Daikhin96], Etchenique propone un solo modelo aplicable exclusivamente a la conocida como rugosidad "fuerte" [Etchenique00].

Estos autores denominan rugosidad "suave" a aquella cuya altura característica es menor que su dimensión lateral. Para modelar este tipo de rugosidad, se relacionan en el interfaz sólido-líquido las ecuaciones de Navier-Stokes que predicen el comportamiento del medio líquido con las ecuaciones de la elasticidad general que gobiernan el comportamiento del medio sólido. Para resolver el complejo sistema resultante, se aplica la conocida "teoría de la perturbación" (ver apéndice A).

Se denomina rugosidad "fuerte" a aquella cuya dimensión vertical es del mismo orden, o mayor, que su dimensión lateral. Superficies porosas y/o con cavidades son ejemplos de superficies con rugosidad fuerte. En estos casos la aplicación de la "teoría de la perturbación" no es posible, como se explicará más adelante en este trabajo. Por ello, tanto Daikhin et Urbakh como Etchenique optan por modelar el comportamiento del fenómeno

rugoso aplicando la llamada "ley de Darcy" que define empíricamente el comportamiento de una superficie porosa en contacto con una fase líquida.

Las superficies reales que se dan en los experimentos con cristales resonadores de cuarzo suelen tener una combinación de rugosidad "suave" y "fuerte".

A continuación, se realiza una breve descripción de los fundamentos y limitaciones de los modelos anteriormente mencionados.

### 1.5.1 Modelos para rugosidad "fuerte" de Daikhin et Urbakh y Etchenique

En la Figura 1. 6, se presentó un medio rugoso en contacto con un medio líquido. Tanto Daikhin et Urbakh como Etchenique utilizan en sus modelos dos parámetros para definir las dimensiones características de la rugosidad [Daikhin96, Daikhin02, Etchenique00], (ver Figura 1. 6): la dimensión vertical de la rugosidad definida por el grosor de la capa rugosa  $L_r$ ; y la dimensión lateral que viene dada por la dimensión característica de la porosidad y que se representa con el parámetro  $\zeta$ . Este parámetro aparece en la ley de Darcy, la cual cuantifica la velocidad media de las partículas de un fluido  $v$ , a través de un medio poroso sometido a un gradiente de presión  $\nabla P$ . Esta ley está gobernada por la ecuación:

$$v = -\frac{\zeta^2}{\eta} \nabla P \quad (1.20)$$

donde  $\eta$  es la viscosidad del fluido y  $\zeta^2$  representa la porosidad media de la capa rugosa [Daikhin96] la cual, de acuerdo con Etchenique, depende de la micro-estructura de la capa y solamente puede ser predicha por teorías aproximadas [Etchenique00]. La ecuación anterior es válida solamente si se consideran las siguientes condiciones:

1. La condición de no deslizamiento (non-slip) puede ser aplicada en el interfase sólido-líquido.
2. No existe flujo turbulento, lo cual es cierto para un número de Reynolds menor que la unidad. Esta condición puede aplicarse en el caso de las oscilaciones de pequeña amplitud del cristal de cuarzo [Martin93-1].
3. La dimensión lateral de la rugosidad  $\zeta$ , es mucho menor que la dimensión vertical  $L_r$ .

En los modelos de Daikhin y Etchenique la capa rugosa se asume rígida y se mueve en fase con la oscilación del cristal; sólo se consideran las propiedades geométricas de la rugosidad, obviando las físicas como la densi-

dad o la viscoelasticidad. Este hecho introduce una limitación cuando la magnitud de  $L_r$  es comparable con la profundidad de penetración de la onda en la capa de recubrimiento rugoso. En este caso, no se puede suponer razonablemente que la capa rugosa se mueva en fase con el cristal. Otras consideraciones sobre estos modelos se pueden encontrar en la bibliografía [Jiménez04-1].

Daikhin et Urbakh y Etchenique asumen que el líquido en el material poroso está sometido a dos tipos diferentes de fuerza: la primera está asociada con la típica fuerza de cizalla ejercida sobre el líquido por la superficie oscilante del cristal, la cual es descrita por la ecuación de Newton con viscosidad compleja; y la segunda es la fuerza de arrastre aplicada a las partículas del fluido debido al movimiento del medio poroso. Daikhin et Urbakh y Etchenique usan la ecuación de Brickman para describir esta segunda fuerza, que tiene la siguiente expresión:

$$P_r = \eta \zeta^{\xi-2} (v_0 - v) \quad (1.21)$$

donde  $v_0$  es la velocidad de la capa porosa oscilante.

Daikhin et Urbakh usan directamente la ecuación de Brickman descrita en la expresión (1.21) para modelar la fuerza de arrastre aplicada sobre las partículas del fluido por el medio poroso oscilante. En la ecuación de Brickman la fuerza de arrastre y la velocidad de las partículas del fluido están en fase. Esto es debido a que la ecuación de Brickman, se deduce a partir de una modificación de la ley de Darcy, donde se considera flujo estacionario a través de un medio poroso. La derivada respecto al tiempo de la velocidad no existe en flujo estacionario y la fuerza de arrastre y la velocidad están en fase. Esta es la razón por la que Etchenique extiende la ecuación de Brickman dando a la porosidad un carácter complejo. El resultado es la adición de una parte reactiva, es decir un término inercial, a la fuerza de arrastre dada por la ecuación de Brickman. De acuerdo con Etchenique [Etchenique00], cuando la profundidad de penetración de la onda en el medio viscoso  $\delta$  es mucho mayor que la dimensión lateral de la rugosidad  $\zeta$ , las partículas de fluido se mueven en fase con la fuerza de arrastre aplicada por el medio poroso. Sin embargo, cuando  $\delta$  decrece en relación con  $\zeta$ , el movimiento del líquido deja de estar en fase con la superficie porosa, y son necesarios valores complejos de  $\zeta$  para modelar el movimiento del sistema formado por el líquido y el medio poroso. En el caso límite, cuando  $\delta \ll \zeta$ , sólo una capa muy fina de líquido en contacto con la superficie porosa es afectada por el movimiento de la fase sólida, entonces el sistema se comporta como un resonador pulido cuya área de contacto ha crecido debido al efecto de la superficie rugosa.



La aplicación de la ecuación de Brickman y su extensión permite la obtención de las siguientes expresiones para la impedancia acústica derivada para el modelo de Daikhin et Urbakh (Ec. (1.22)) y Etchenique (Ec. (1.23)) [Etchenique00, Bund02, Jiménez04-1]:

$$Z_2 = j\omega\rho \left[ \frac{1}{K_0} + \frac{L_r}{\xi^2 K_1^2} - \frac{1}{M \xi^2 K_1^2} \left( \frac{2K_0}{K_1} (\cosh(K_1 L_r) - 1) + \sinh(K_1 L_r) \right) \right] \quad (1.22)$$

$$Z_2 = j\omega\rho \left[ \frac{1}{K_0} + \frac{L_r}{\xi K_1} - \frac{1}{M \xi} \left\{ \frac{2K_0}{K_1^2} (\cosh(K_1 L_r) - 1) + \frac{1}{K_1} \sinh(K_1 L_r) + \frac{1}{K_0} (\cosh(K_1 L_r) - 1) \left( \frac{1}{\xi K_1} - 1 \right) \right\} \right] \quad (1.23)$$

Donde  $K_1^2 = K_0^2 + \xi^{-2}$  y  $K_0 = \sqrt{j\omega\rho / \eta}$ .

Cuando  $L_r \rightarrow 0$ , sólo permanece el primer término de las ecuaciones (1.22) y (1.23), reproduciéndose de esta manera la ecuación de Kanazawa.

### 1.5.2 Modelo para rugosidades suaves de Daikhin et Urbakh

El tratamiento matemático que utilizan Daikhin et Urbakh para definir la rugosidad "suave" es mucho más riguroso que el desarrollo para el caso de rugosidades "fuertes". A diferencia de éstos últimos, que suponen la región donde se produce el fenómeno rugoso como un medio poroso para poder aplicar una ecuación simple fundamentada en la ley de Darcy, el modelo de rugosidad "suave" se basa en la ecuación de Navier-Stokes, que sí que define realmente el fenómeno físico de oscilación que acontece en el interfaz sólido-líquido. En este modelo se asume que el interfaz rugoso entre el cristal de cuarzo y el líquido está descrito por la ecuación (1.24).

$$z = \zeta(x, y) \quad (1.24)$$

El plano  $z=d$  se toma tal que la media de la función  $\zeta(x,y)$  sea igual a cero. Para describir el movimiento en la región del cuarzo se utiliza la ecuación de ondas, mientras que en el caso del medio líquido se utiliza la ecuación de Navier-Stokes linealizada como se ha mencionado anteriormente. El flujo en el medio líquido se supone incompresible. Para relacionar los desplazamientos en el cristal de cuarzo con las velocidades de flujo generadas en el medio fluido se aplican las siguientes condiciones de contorno:

- la ausencia de fuerzas en la superficie del cristal en  $z=0$ .
- La igualdad de velocidades en el cristal y en el fluido en el interfaz definido por la ecuación (1.24).

Para poder resolver el complejo sistema de ecuaciones diferenciales generado aplicando estas condiciones de contorno, se aplica el método de la teoría de perturbaciones (ver apéndice A), válido para aquellas superficies en las que la dimensión de la rugosidad en la dirección  $z$  (valor cuadrático medio de la altura) designada  $h$ , es menor que la dimensión tangencial (longitud de correlación) designada  $l$ . Además se asume que la altura de la rugosidad es menor que la profundidad de penetración en el medio fluido. Estas suposiciones se materializan en las ecuaciones (1.25) y (1.26).

$$\nabla \xi(\vec{R}) \ll 1 \quad (1.25)$$

$$\frac{h}{\delta} \ll 1 \quad (1.26)$$

Tras un arduo desarrollo matemático se llega a las ecuaciones (1.27) y (1.28) que definen respectivamente la variación en la frecuencia de resonancia y en el factor de pérdidas del cristal de cuarzo debido al efecto rugoso de su superficie.

$$\Delta\Omega = -\frac{(\Omega_0)^{3/2} (\rho_l \eta)^{1/2}}{\pi (2\rho_q c_{66})^{1/2}} \left\{ 1 + \sqrt{2} \delta^{-1} S^{-1} \int \frac{d\vec{K}}{(2\pi)^2} |\xi(\vec{K})|^2 K \left[ a(K\delta) - \sqrt{2}/K\delta + \sqrt{2} \cos^2 \phi \right] \right\} \quad (1.27)$$

$$\Delta\Gamma = \frac{(\Omega_0)^{3/2} (\rho_l \eta)^{1/2}}{\pi (2\rho_q c_{66})^{1/2}} \left\{ 1 + \sqrt{2} \delta^{-1} S^{-1} \int \frac{d\vec{K}}{(2\pi)^2} |\xi(\vec{K})|^2 K \left[ \sqrt{2}/K\delta - b(K\delta) \right] \right\} \quad (1.28)$$

donde  $\rho_l$  es la densidad del medio líquido,  $\rho_q$  es la densidad del cuarzo,  $\eta$  la viscosidad del medio líquido,  $c_{66}$  es el modulo de cizalla del cuarzo,  $S$  es la superficie del cristal,  $\delta$  la profundidad de penetración,  $\xi(\vec{K})$  es la transformada bidimensional del perfil superficial rugoso,  $\vec{K}$  es el vector de onda de la transformación,  $K$  es el módulo del vector de onda,  $\phi$  es el ángulo entre la dirección de las oscilaciones de cizalla y el vector de onda y  $a(t)$  y  $b(t)$  son parámetros definidos respectivamente por las ecuaciones (1.29) y (1.30).

$$a(t) = \left[ \left( 1 + 4t^{-4} \right)^{-1/2} + 1 \right]^{1/2} \quad (1.29)$$

$$b(t) = \left[ \left( 1 + 4t^{-4} \right)^{-1/2} - 1 \right]^{1/2} \quad (1.30)$$

Finalmente,  $\Omega_0$  es la frecuencia de resonancia del cristal de cuarzo en el vacío y está definida por la ecuación (1.31).

$$\Omega_0 = \frac{\pi}{d} \sqrt{\frac{c_{66}}{\rho_q}} \quad (1.31)$$

Si se hace  $\xi=0$  en la ecuación (1.27) se obtienen las ecuaciones de Kanazawa [Kanazawa85-1, Kanazawa85-2] para la frecuencia de resonancia de un cristal resonador de cuarzo pulido.

En teoría, mediante este desarrollo matemático es posible predecir el efecto rugoso producido por cualquier superficie si se conoce su función de distribución de alturas,  $\zeta(x,y)$ . En la práctica, esto resulta imposible, pues sería necesaria una reconstrucción tridimensional perfecta de toda la superficie de un cristal de cuarzo mediante métodos de microscopía de fuerzas atómicas. Daikhin et Urbakh han aplicado este modelo para superficies simplificadas ideales, en concreto para una superficie periódicamente corrugada y para una superficie con rugosidad aleatoria de distribución Gaussiana.

### 1.5.3 Aplicación de los modelos de rugosidad Daikhin et Urbakh para la interpretación de resultados experimentales

En el año 2002 Bund y Schneider presentan un nuevo método para calcular la masa, las propiedades viscoelásticas y la rugosidad superficial de capas de polímero conductor depositadas mediante técnicas electroquímicas. Para ello, hacen uso del desplazamiento de la curva de resonancia de un cristal de cuarzo [Bund02].

Para caracterizar la rugosidad superficial del material depositado, Bund et al., emplean tanto el modelo de Daikhin et Urbakh como el de Etchenique para rugosidades "fuertes", los cuales son válidos para superficies con rugosidades de dimensiones similares a la profundidad de penetración de la onda en el medio. También comparan sus resultados experimentales con otros modelos más sencillos, como el de Schumacher [Schumacher85].

Puesto que la capa de polímero que Bund deposita en su experimento presenta rugosidad superficial, a las incógnitas clásicas de una capa polimérica ( $G_1$ ,  $G_1''$ ,  $h_1$ ,  $\rho_1$ ), les añade las correspondientes a las dimensiones de la rugosidad "fuerte": la dimensión vertical  $L_r$  y la dimensión lateral  $\xi$ .

Su modelo está formado por 4 capas: el cuarzo pulido, en contacto con una capa uniforme de polímero de espesor  $h_1$ ; sobre ella, se considera una capa no uniforme que representa la rugosidad superficial. Esta última capa está en contacto con un líquido newtoniano semi-infinito. Bund et al.,

asumen que la densidad del polímero y de la capa rugosa son iguales. Proponen un método para la extracción de las 6 incógnitas anteriormente mencionadas que se basa en las siguientes suposiciones:

1. El incremento de frecuencia total, corresponde a la suma del incremento debido a la capa viscoelástica uniforme, más el incremento debido a la capa que representa la rugosidad superficial,  $\Delta f_s^{cal} = \Delta f_s^L + \Delta f_s^{rug}$ . Esta relación aditiva entre ambas capas, deja de ser cierta cuando se trabaja con capas de polímero gruesas, independientemente de que la capa que representa la rugosidad superficial sea fina [Bandey99]. En consecuencia, esta suposición constituye una limitación muy importante de este método de la que Bund es consciente
2. Asumen que durante la síntesis electroquímica del polímero,  $G_1'$ ,  $G_1''$ , y  $\rho_l$  no varían, siendo el único parámetro variable  $h_l$ .
3. Asumen que  $L_r$  es función de  $h_l$ , siendo su dependencia la siguiente:

$$L_r(h_l) = L_r^{\max} \left( 1 - \exp \left( k \left( h_l / L_r^{\max} \right)^n \right) \right) \quad (1.32)$$

donde  $k$  y  $n$  son constantes ( $n=1$  y  $k$  entre 1 y 3).

Una vez realizados los experimentos y extraídos todos los parámetros que los caracterizan utilizando distintos modelos para describir el comportamiento rugoso, Bund et al., concluyen que el modelo para rugosidades "fuertes" de Daikhin et Urbakh describe mejor sus resultados experimentales que el modelo de Etchenique. Además, afirman que el modelo de Schumacher no predice adecuadamente el fenómeno rugoso puesto que no considera las variaciones en la parte real de la impedancia acústica obtenida en los experimentos.

En el año 2007, Rechendorff et al., realizaron un estudio experimental de la influencia de la rugosidad superficial en las medidas realizadas con microbalanzas basadas en cristales resonadores de cuarzo [Rechendorff07]. Para tratar de interpretar los resultados experimentales utilizaron el modelo de rugosidad "suave" de Daikhin et Urbakh y el modelo de Schumacher [Schumacher85] en el que solamente se tiene en cuenta la variación en la frecuencia de resonancia debida a la masa de líquido atrapada rígidamente en las cavidades rugosas. Rechendorff depositó diversos films rugosos de tantalum sobre los electrodos de oro de cristales resonadores de cuarzo de 5 MHz basándose en la técnica de la evaporación e-gun con ángulo de incidencia oblicuo [Rechendorff07]. Variando este ángulo de incidencia es posible obtener superficies rugosas con diferentes magnitudes del valor cuadrático medio de la altura rugosa. Estas superficies fueron posteriormente estudiadas mediante un microscopio de fuerzas atómi-

cas, confirmando las distintas estructuras de las muestras. Las impedancias acústicas de los cristales tratados para exhibir superficies rugosas fueron medidas en contacto con líquidos de distintas viscosidades y densidades. Finalmente se compararon los resultados experimentales de impedancia acústica con los valores predichos por los modelos teóricos.

Rechendorff concluye que para el caso de rugosidades con un valor cuadrático medio de la altura rugosa pequeño en comparación con la profundidad de penetración de la onda, la superficie se puede considerar hidrodinámicamente pulida, ya que no se aprecian desviaciones en los resultados experimentales de los teóricos predichos por Kanazawa para un cristal de cuarzo no rugoso [Kanazawa85-1, Kanazawa85-2].

En el caso de rugosidades con valores de altura efectiva de unos 6.2 nm, se comienzan a producir diferencias entre la impedancia acústica teórica para una superficie lisa y los resultados experimentales. En este caso, el sencillo modelo de Schumacher predice mejor los resultados experimentales que el complejo modelo de la rugosidad "suave" de Daikhin et Urbakh. Se observa que la rugosidad afecta principalmente a la parte imaginaria de la impedancia acústica, mientras que la parte real prácticamente no varía en relación a la de una superficie plana teórica. El modelo de Schumacher, que solamente predice variaciones en la parte imaginaria debidas a la masa de líquido rígidamente acoplada a la superficie rugosa se ajusta mejor a la realidad experimental que el modelo de Daikhin et Urbakh que predice variaciones tanto en la parte real como en la parte imaginaria.

Para rugosidades mayores, de unos 32.9 nm, el modelo de Schumacher comienza a fallar, mientras que el modelo de Daikhin et Urbakh se ajusta bastante bien a los resultados experimentales. Rechendorff también observa que los valores de la impedancia acústica real apenas difieren de los de una superficie plana incluso para el caso de rugosidades muy pronunciadas.

#### **1.5.4 Modelo de rugosidad de Arnau**

De los epígrafes anteriores se concluye que las descripciones matemáticas del modelo de rugosidad "suave" de Daikhin y Etchenique no permiten una interpretación física simple de las diferentes contribuciones de la capa rugosa en la impedancia acústica de carga. Por otro lado, el modelado de la superficie rugosa vibrante en contacto con un líquido a partir de un flujo estacionario atravesando un medio poroso que se realiza en los modelos de rugosidad "fuerte" no es muy exacto. En realidad, un modelo que represente una superficie rugosa vibrante en contacto con un líquido proporcionará las descripciones matemáticas necesarias para una interpretación física

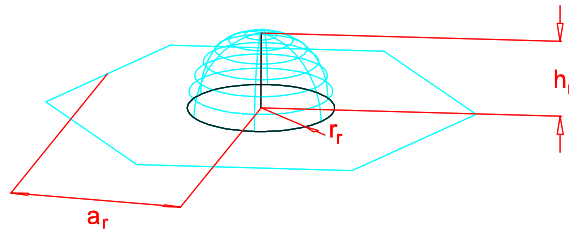
más simple de las diferentes contribuciones de la rugosidad a la respuesta del sensor. Un modelo de estas características ha sido propuesto recientemente por Arnau et al. [Arnau05, Ochoa04]. Este modelo caracteriza la rugosidad como una superficie de casquetes esféricos cuyas dimensiones características son la altura  $h_r$  y el radio  $r_r$  (ver Figura 1. 7). La solución de la ecuación de Navier-Stokes linealizada aplicada a este modelo permite obtener la correspondiente fuerza de arrastre y la impedancia acústica de la superficie rugosa en contacto con un líquido suponiendo que no existe un efecto de interferencia entre casquetes próximos. La impedancia acústica predicha se expone en la siguiente ecuación:

$$Z_2 = 3\pi\eta_2(nh_r) + \frac{3}{2}\frac{\eta_2}{\delta}\Delta S_r + \frac{\eta_2}{\delta} + j\omega\left(\frac{3}{4}\rho_2\delta\Delta S_r + \frac{1}{2}\rho_2V_r + \frac{1}{2}\rho_2\delta\right) \quad (1.33)$$

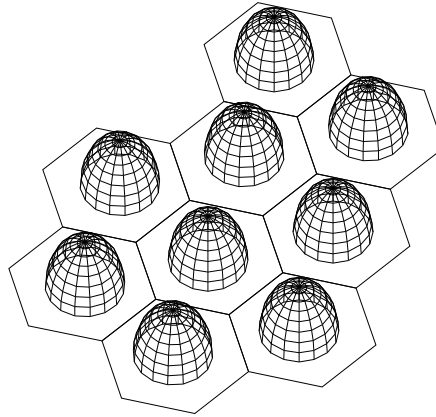
donde  $\Delta S_r$  es el incremento de la superficie por unidad de área debido a la rugosidad en relación con una superficie plana (término adimensional) y  $V_r$  es el volumen de la rugosidad por unidad de área (término con dimensiones de altura, que corresponde a la altura de un volumen de altura constante y volumen equivalente al volumen rugoso). Para el modelo de casquetes esféricos, la superficie y el volumen de un solo casquete son:  $S_r^1 = \pi(h_r^2 + r_r^2)$  y  $V_r^1 = \pi h_r(h_r^2 + 3r_r^2)/6$ . El incremento de la superficie debida a un casquete en relación con la superficie plana puede hallarse haciendo  $h_r \rightarrow 0$  y restando el resultado de la superficie total. De esta manera,  $\Delta S_r = n\pi h_r^2$  y  $V_r = n\pi h_r(h_r^2 + 3r_r^2)/6$ , donde  $n$  es el número de casquetes por unidad de área. Para una cobertura completa de la superficie del cristal con una distribución uniforme de casquetes (Figura 1. 8),  $n$  puede ser calculada como la relación entre el área unidad y el área de un hexágono en el cual la base del casquete está inscrita:

$$n = 1/(2a_r^2\sqrt{3}) \quad (1.34)$$

donde  $a_r$  es la apotema del hexágono.



**Figura 1. 7.** Representación gráfica de los parámetros del modelo de rugosidad de Arnau



**Figura 1. 8.** Representación de la superficie rugosa de un cristal de cuarzo basada en el modelo de Arnau

De acuerdo con la ecuación (1.33), la fuerza de arrastre por unidad de área es la suma de dos componentes: una en fase con la velocidad de oscilación, la parte de pérdidas, y la otra desfasada  $90^\circ$ , la parte inercial. Cada una de las componentes está constituida por tres sumandos. Los terceros sumandos de cada componente corresponden a los términos de Kanazawa de una superficie plana. En la parte de pérdidas, el primer término está relacionado con la conocida ley de Stokes, mientras que el segundo es un término adicional proporcional al incremento de la superficie del sensor debida a la rugosidad,  $\Delta S_r$ , e inversamente proporcional a la profundidad de penetración de la onda en el líquido,  $\delta$ . En la componente inercial de la ecuación (1.33), hay un primer término afectado por el incremento de superficie,  $\Delta S_r$ , el cual representa la masa extra de líquido desplazada por la onda de cizalla generada por el movimiento oscilatorio de la superficie extra. Asimismo, el segundo sumando se corresponde con la masa de líquido desplazada por el movimiento oscilante del volumen de la rugosidad,  $V_r$  [Arnau05].

Este modelo ha sido utilizado en este trabajo de investigación, donde se profundiza en el modelo de rugosidad de la ecuación (1.33), se analizan los términos que lo componen y se compara con otros modelos ya existentes. Adicionalmente, se utiliza para tratar de interpretar resultados experimentales complejos con éxito razonable [Jiménez06-2]. Finalmente, se tratará de mejorarlo, reformulando su expresión, e incluyendo efectos físicos importantes no considerados en su primera definición.





## 2. Objetivos

-El objetivo inicial de la tesis es el estudio del estado del arte en relación a los modelos existentes que permiten cuantificar la contribución de la rugosidad sobre la respuesta acústica del sensor piezoeléctrico de cuarzo en corte AT, así como el estudio de sus limitaciones.

-El objetivo principal de la tesis es estudiar si una superficie de casquetes semi-esféricos sirve para modelar el efecto de una superficie rugosa aleatoria sobre la impedancia acústica superficial. Asimismo, se pretende analizar qué parámetros físicos representan de forma óptima la contribución rugosa sobre la impedancia acústica del sensor.

-Si se confirma que es posible modelar el efecto del fenómeno rugoso sobre la impedancia acústica de una superficie aleatoria mediante una superficie equivalente de casquetes, se plantea el objetivo adicional de estudiar si es posible obtener un modelo de casquetes esféricos más preciso que el de Arnau, que incluya el efecto de interferencia, y que sea suficientemente simple como para poder seguir usándolo para la interpretación física del fenómeno rugoso.



### 3. Aportación. Parte 1: Estudio del Modelo de Rugosidad de Arnau

#### 3.1 Introducción

En esta aportación se ha realizado un estudio pormenorizado del comportamiento de los diferentes términos que forman la expresión de la impedancia acústica de carga deducida en el modelo de rugosidad de Arnau. Esta impedancia viene dada por:

$$Z_L = 3\pi\eta_2(nh_r) + \frac{3}{2}\frac{\eta_2}{\delta}\Delta S_r + \frac{\eta_2}{\delta} + j\omega\left(\frac{3}{4}\rho_2\delta\Delta S_r + \frac{1}{2}\rho_2V_r + 2\rho_2\delta\right) \quad (3.1)$$

Como se puede observar la impedancia acústica depende de las propiedades físicas del medio semi-infinito que está situado sobre el recubrimiento, densidad  $\rho_2$  y viscosidad  $\eta_2$ , y de las características geométricas (que no físicas) del recubrimiento. Como se comentó previamente en la introducción, la capa rugosa se modela como si fuera un conjunto de casquetes semi-esféricos distribuidos uniformemente por la superficie del cristal. Para realizar esta distribución, la superficie se divide en celdas hexagonales de apotema  $a_r$ ; dentro de cada celda se sitúa un casquete, de modo que el radio de la circunferencia que forma la base del casquete,  $r_r$ , debe ser siempre  $r_r \leq a_r$ . La dimensión vertical de los casquetes, es decir su altura, viene dada por  $h_r$ , que debe ser siempre  $h_r \leq r_r$ . En la Figura 3.8 se puede observar la capa rugosa y en la Figura 3.7 sus dimensiones características.

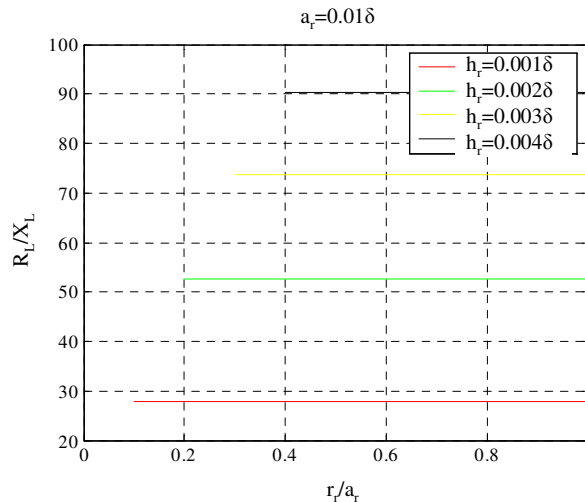
Variando las relaciones entre los tres parámetros con los que se define la geometría del modelo,  $a_r$ ,  $h_r$  y  $r_r$ , dentro de los límites permitidos y, a su vez, las relaciones de éstos con la profundidad de penetración  $\delta$ , se pueden simular diferentes tipos de superficies rugosas. Así, por ejemplo, si se escoge un valor pequeño de  $r_r$  con respecto a  $a_r$ , se estará generando una superficie rugosa con crestas más espaciadas y por lo tanto más porosa que si escogemos un valor de  $r_r$  próximo a  $a_r$ , en cuyo caso la superficie lisa será mucho menor y la porosidad también disminuirá. Si se escoge un valor pequeño para  $h_r$  se estará generando una superficie con una rugosidad poco pronunciada, mientras que si se escoge un valor de  $h_r$  próximo a  $r_r$  se estará simulando una rugosidad de máxima dimensión vertical. Por otro lado, como se verá más adelante, la relación de los parámetros geométricos con la profundidad de penetración de la onda  $\delta$  es muy importante; por ejemplo, el modelo se comportará de manera muy

distinta para  $a_r = 0.01\delta$  que para  $a_r = 0.1\delta$  aunque la porosidad sea la misma en los dos casos.

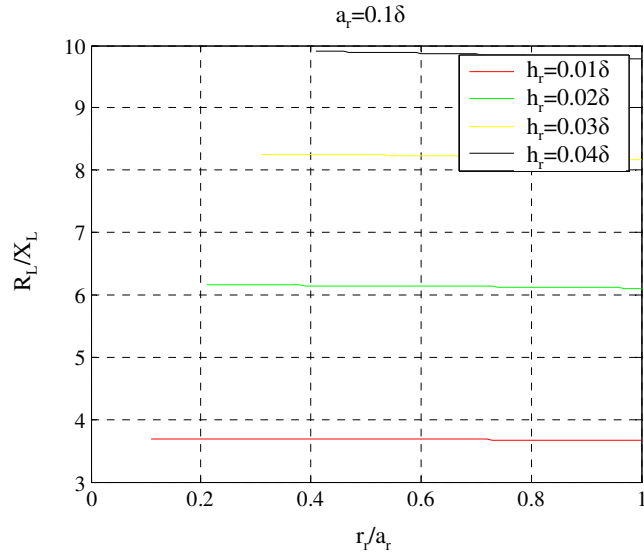
## 3.2 Análisis Numérico

### 3.2.1 Análisis de la relación $R_L/X_L$

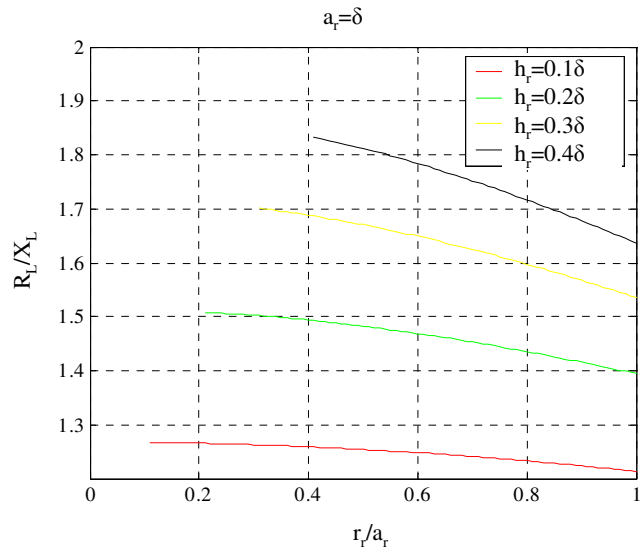
Para valorar la contribución del efecto rugoso sobre la impedancia acústica, se analizará en primera instancia el cociente de  $R_L$  (parte real de  $Z_L$ ) y  $X_L$  (parte imaginaria de  $Z_L$ ). Esta relación, para un medio newtoniano semi-infinito, si no se tiene en cuenta el efecto de la rugosidad superficial es  $R_L/X_L = 1$ . Por tanto, estudiando las variaciones del ratio  $R_L/X_L$  sobre dicho valor, se puede llegar a conclusiones sobre las predicciones que hace el modelo acerca del fenómeno de la rugosidad. De la Figura 3.1 a la Figura 3.6, se han representado gráficas paramétricas de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $r_r/a_r$  para diferentes valores de  $a_r$ . En cada una de ellas se observa la evolución de dicha relación para diferentes valores de  $h_r$ . Es importante indicar que sólo se han representado valores de  $r_r \geq h_r$ , ya que son los únicos para los que el modelo es válido. Se ha supuesto que el medio líquido en el que se encuentra sumergida la superficie rugosa del cristal es agua, y que la frecuencia de oscilación del sensor es 10 MHz. En estas condiciones la profundidad de penetración de la onda en el medio,  $\delta$  es aproximadamente 178 nm.



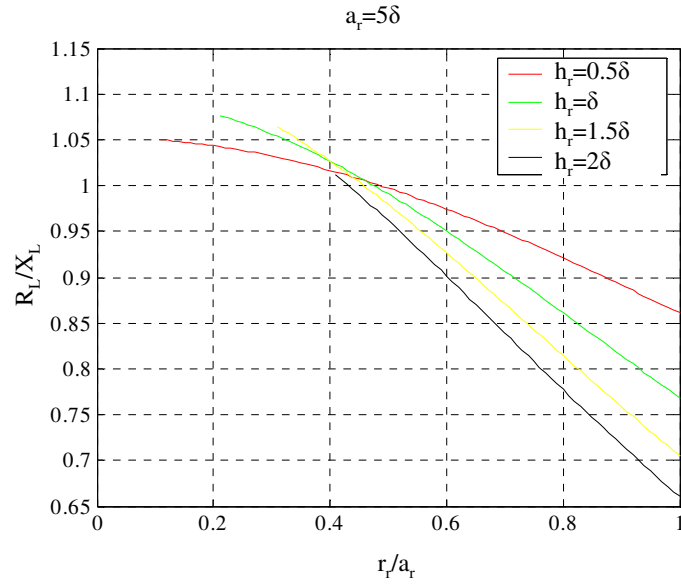
**Figura 3.1.** Evolución de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 0.01\delta$ .



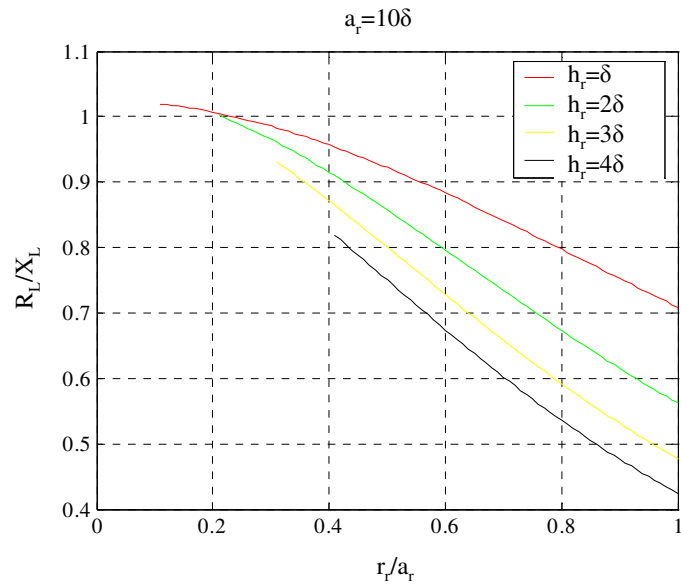
**Figura 3.2.** Evolución de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $r_i/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 0.1\delta$



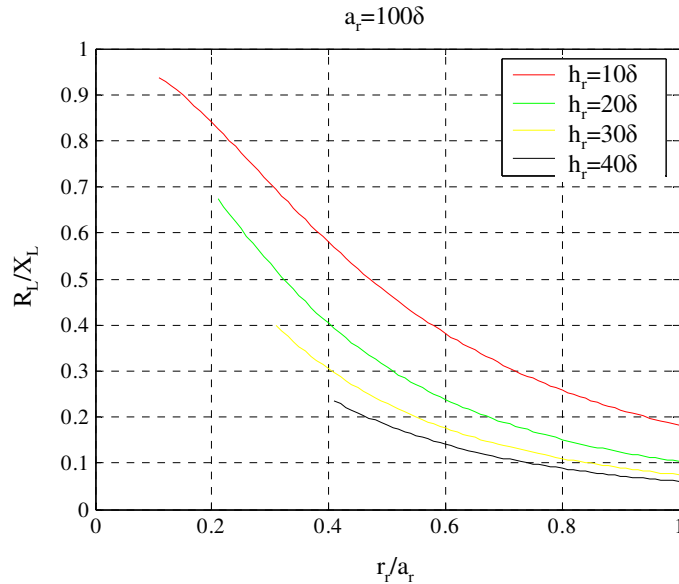
**Figura 3.3.** Evolución de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $r_i/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = \delta$



**Figura 3.4.** Evolución de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 5\delta$



**Figura 3.5.** Evolución de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 10\delta$



**Figura 3.6.** Evolución de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 100\delta$

El análisis de las figuras anteriores (Figura 3.1 a la Figura 3.6) permite concluir que la dependencia de la relación  $R_L/X_L$  con la dimensión vertical de los casquetes  $h_r$  está condicionada por el valor de  $a_r$ . Como se observa en la Figura 3.1, cuando  $a_r$  es muy pequeño comparado con la profundidad de penetración  $\delta$ , el cociente  $R_L/X_L$  es mayor cuanto mayor es  $h_r$ . En cambio, de la Figura 3.6 se desprende que para valores grandes de la apotema  $a_r$ , cuanto mayor es  $h_r$  menor es  $R_L/X_L$ . El cambio de tendencia se produce en la Figura 3.4 para  $a_r = 5\delta$ .

Por otra parte, el modelo se comporta de manera muy distinta en función del valor de la apotema. Cuando el valor de  $a_r$  es muy pequeño en relación con la profundidad de penetración  $\delta$ , el cociente  $R_L/X_L$  toma valores muy elevados y alejados de los que debería tomar una superficie pulida en contacto con un medio newtoniano semi-infinito. Según parecen indicar los resultados experimentales [Rechendorff07], el valor máximo de la relación  $R_L/X_L$  con sentido físico es 1. Es decir, el incremento de rugosidad de la superficie del cristal de cuarzo debe hacer descender el valor de la relación  $R_L/X_L$ ; sin embargo, cuando la rugosidad decrece, el límite asintótico superior al que tiende la relación  $R_L/X_L$  es 1.

En cambio, en los casos en los que  $a_r$  es mucho mayor que la profundidad de penetración, por ejemplo  $a_r = 100\delta$ , el cociente  $R_L/X_L$  toma

valores por debajo de la unidad para valores de  $h_r$  muy reducidos, incluso inferiores al 10% del valor de  $a_r$ . Para el rango de valores de  $a_r$  que comienza aproximadamente para  $a_r \geq 5\delta$ , la relación  $R_L/X_L$  tiene un comportamiento muy similar a los resultados experimentales recogidos en la bibliografía [Bund02, Bund04, Rechendorff07].

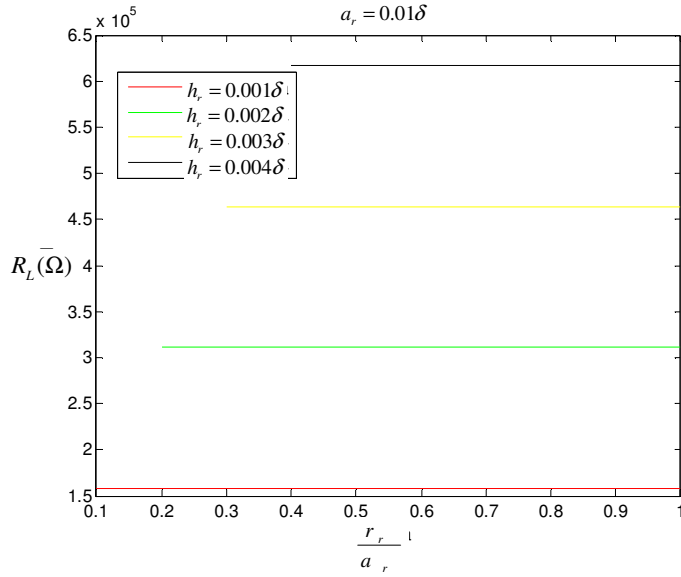
El modelo de Arnau supone que no existen interferencias entre un casquete rugoso y sus vecinos, por ello calcula el fenómeno rugoso para un solo casquete y después, para calcular la respuesta global de la superficie rugosa, simplemente adiciona los efectos de todos los casquetes. Esto es una aproximación y para calcular la respuesta real se debería resolver el problema con condiciones de contorno armónicas, problema que queda planteado y será relevante en la presente tesis doctoral. Es muy probable que esta simplificación sea la causa de que los resultados predichos por el modelo de Arnau difieran de los resultados experimentales, y de los resultados que proporcionan otros modelos de rugosidad, cuando  $a_r \ll \delta$ , [Daikhin96, Urbakh94-2, Etchenique00].

En la Figura 3.1 y en la Figura 3.2 correspondientes al caso  $a_r \ll \delta$ , se observa que el valor del cociente  $R_L/X_L$  no varía con la relación  $r_r/a_r$ , es decir, con la distancia media entre inhomogeneidades, lo que no parece razonable. Sin embargo, a partir de  $a_r \geq 4.5\delta$  aproximadamente, cuando  $r_r/a_r$  disminuye, es decir, cuando disminuye la superficie rugosa respecto a la lisa o, lo que es lo mismo, aumenta la porosidad, el cociente  $R_L/X_L$  tiende a la unidad según predice la ecuación de Kanazawa [Kanazawa85].

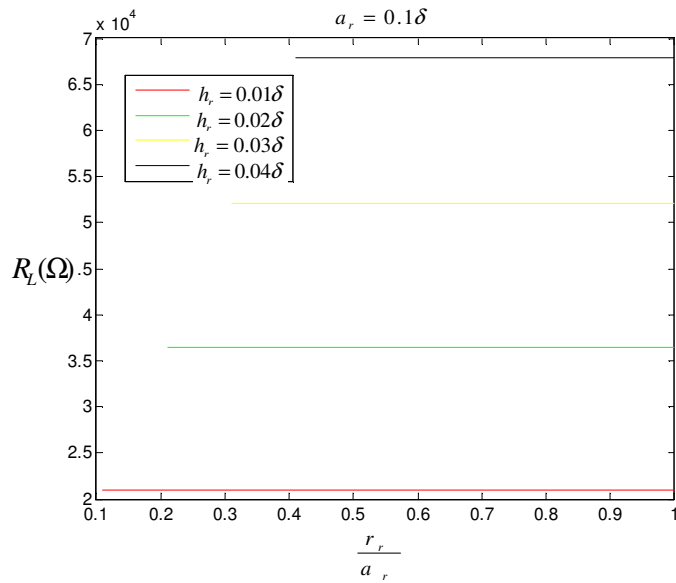
### 3.2.2 Análisis de los valores absolutos de $R_L$ y $X_L$

A continuación, se estudiarán los valores absolutos de la parte real y de la parte imaginaria de la impedancia acústica, con el objetivo de evaluar la validez de los valores predichos por el modelo de Arnau y compararlos con los resultados experimentales existentes en la bibliografía. De la Figura 3.7 a la Figura 3.11 puede observarse la evolución de la parte real de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau para diferentes valores de  $a_r$ . En cada gráfica se ha representado de forma paramétrica  $R_L$  frente a la relación  $r_r/a_r$  para distintos valores de  $h_r$ .

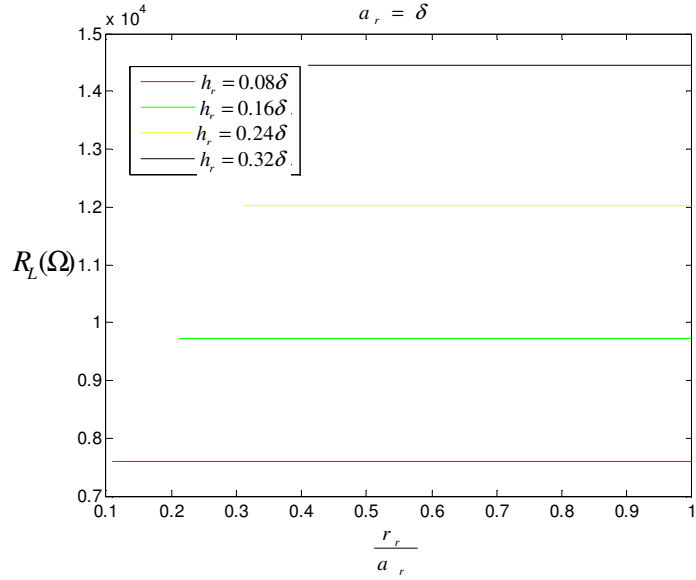




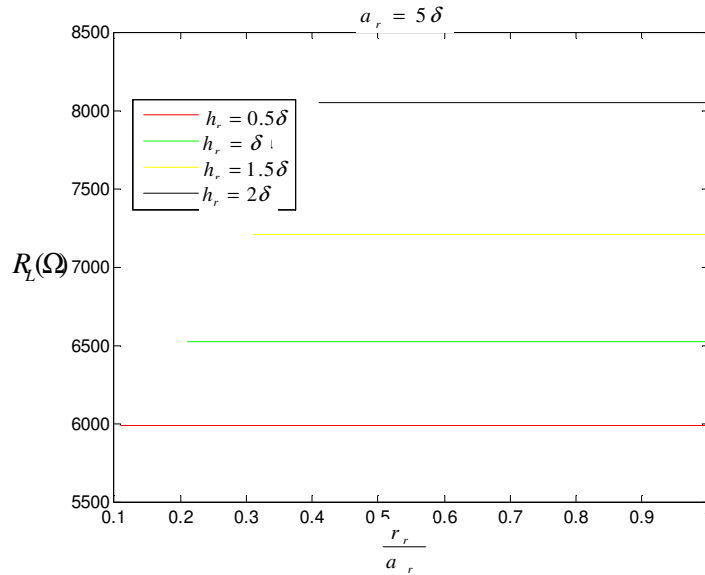
**Figura 3.7.** Evolución de  $R_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 0.01\delta$



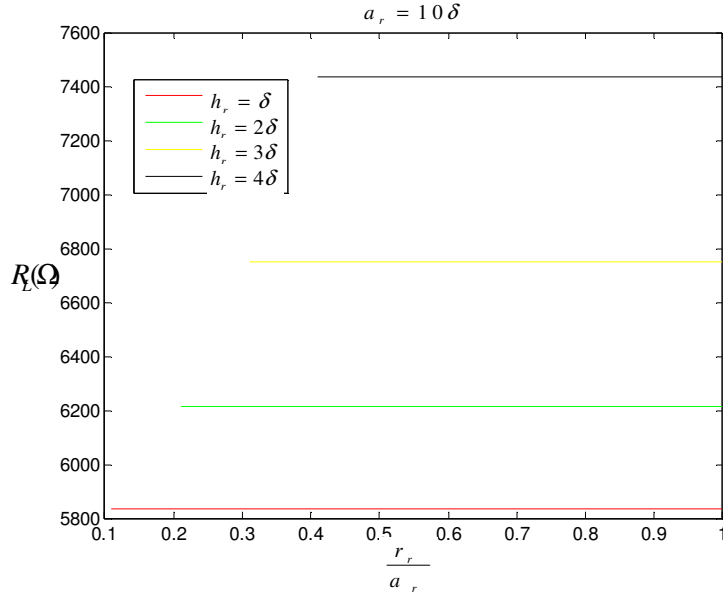
**Figura 3.8.** Evolución de  $R_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 0.1\delta$



**Figura 3.9.** Evolución de  $R_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = \delta$



**Figura 3.10.** Evolución de  $R_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 5\delta$



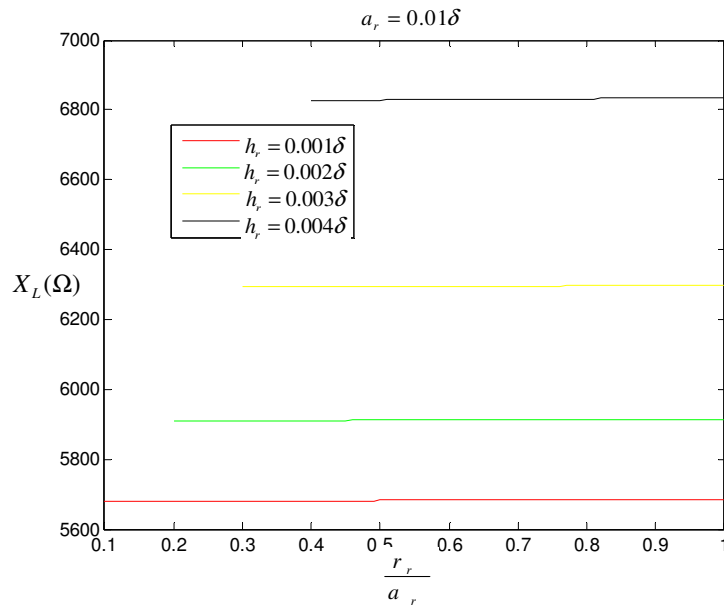
**Figura 3.11.** Evolución de  $R_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 10\delta$

Según los experimentos realizados por Rechendorff [Rechendorff07] la contribución de la rugosidad al factor de disipación es baja incluso para valores muy elevados de la dimensión vertical ( $h_r$  en nuestro caso). El factor de disipación está directamente relacionado con la parte real de la impedancia acústica. El valor de la parte real y de la parte imaginaria de la impedancia acústica para una superficie plana en contacto con agua para una frecuencia de 10MHz es de aproximadamente 5279  $\Omega$ . Como se puede ver en las figuras de la 3.7 a la 3.9, el incremento en la parte real de la impedancia acústica predicho por el modelo de Arnau para valores de  $a_r$  inferiores a  $5\delta$  no se corresponde con los experimentos de Rechendorff. El modelo predice valores elevadísimos de  $R_L$ . Este hecho se debe a que, para valores de  $a_r$  reducidos, el término de Stokes crece desmesuradamente, como se verá en un epígrafe posterior. Solamente, cuando  $a_r$  es mucho mayor que  $\delta$  (Figura 3.10 y Figura 3.11) las variaciones de la parte real de la impedancia acústica no son muy elevadas respecto de la impedancia acústica de una superficie plana.

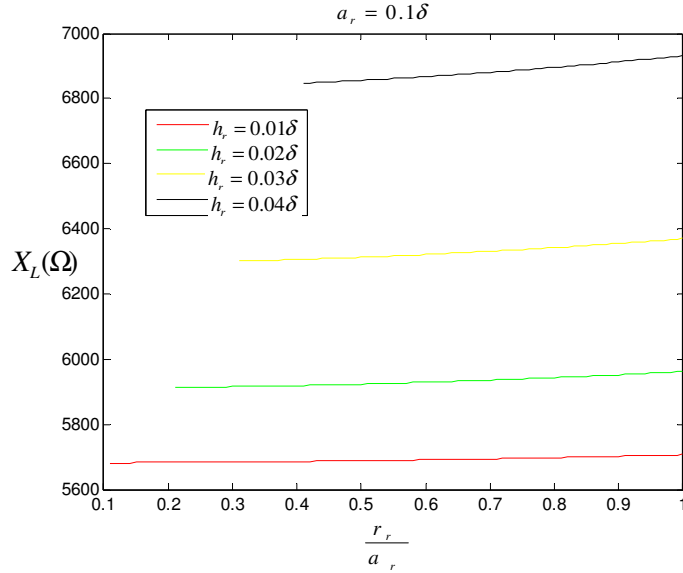
Se hace notar también que, según el modelo de Arnau, la parte real de la impedancia acústica de una superficie rugosa no depende de la relación  $r_r/a_r$  o, lo que es lo mismo, de la dimensión lateral de la rugosidad.

A continuación, se procede a estudiar el comportamiento de la parte imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau. Al igual que con la parte real, se realizarán diversas gráficas para distintos valores de  $a_r$ . En cada una de ellas, se presentará la parte imaginaria de la impedancia acústica en función de la relación  $r_r/a_r$  para distintos valores de  $h_r$ .

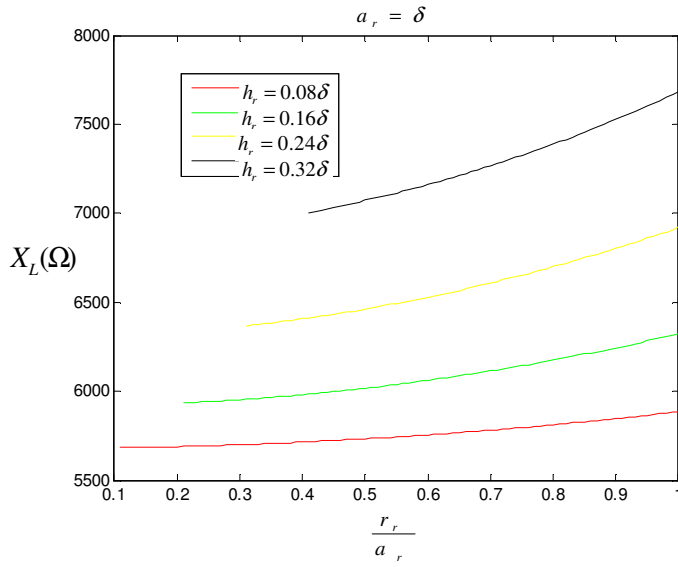
Al contrario que la parte real, la parte imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau se comporta de una manera muy similar a la esperada según los resultados experimentales (ver Figuras Figura 3.12 a Figura 3.16). Conforme aumenta el valor de  $a_r$ , y por tanto el valor de la dimensión vertical máxima permitida  $h_r$ , aumenta el valor de  $X_L$ . También puede observarse que para un valor concreto de  $a_r$ , conforme aumenta la relación  $r_r/a_r$  aumenta el valor de la parte imaginaria de la impedancia acústica tal y como cabría esperar. Cuanto mayor es la relación  $r_r/a_r$  mayor relevancia adquiere el efecto rugoso y mayores son los efectos en la impedancia acústica.



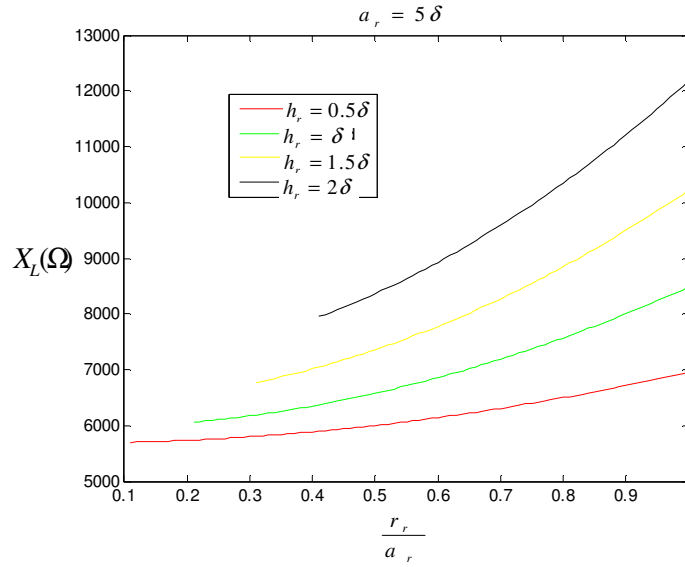
**Figura 3.12.** Evolución de  $X_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 0.01\delta$



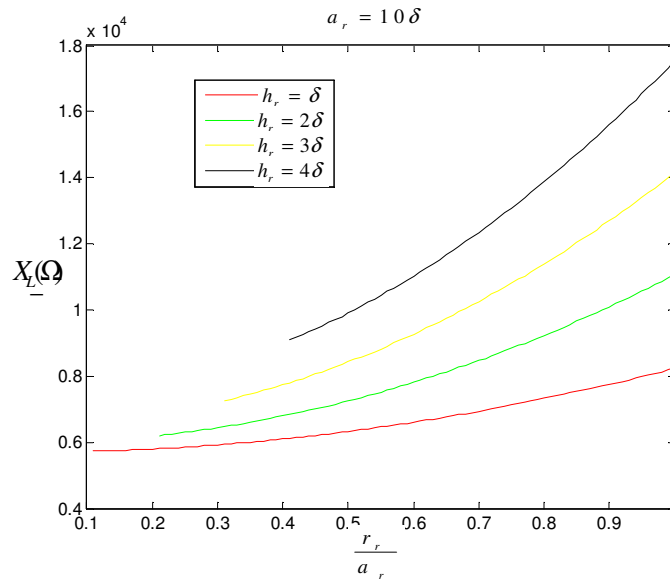
**Figura 3.13.** Evolución de  $X_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 0.1\delta$



**Figura 3.14.** Evolución de  $X_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = \delta$



**Figura 3.15.** Evolución de  $X_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 5\delta$



**Figura 3.16.** Evolución de  $X_L$  en función de  $r_r/a_r$ , predicha por el modelo de rugosidad de Arnau, para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 10\delta$

Se hace notar que para valores muy reducidos de  $r_r/a_r$  ( ver Figura 3.12 y Figura 3.13) el valor de la parte imaginaria de la impedancia acústica casi permanece constante respecto al ratio  $r_r/a_r$ . Este hecho puede deberse a que, en estos casos, el valor de  $r_r$  y  $h_r$  es también muy reducido y, por lo tanto, el término relacionado con el volumen rugoso pierde relevancia con respecto a los términos de superficie rugosa y Kanazawa.

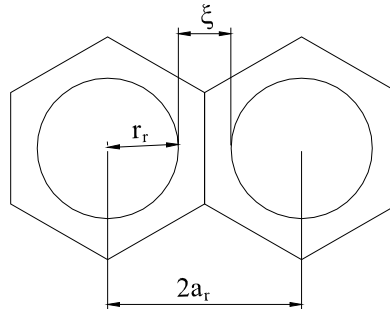
### 3.3 Comparación con los Modelos de rugosidad "fuerte" de Daikhin et Urbakh y Etchenique

Una vez analizada la ecuación de Arnau, se comparará con las ecuaciones derivadas de los modelos para el efecto rugoso "fuerte" de Daikhin et Urbakh y Etchenique [Daikhin02, Etchenique00]. Estos modelos son los más completos propuestos hasta la fecha y se han utilizado para interpretar resultados experimentales [Bund02, Bund04, Rechendorff07].

Se han escogido los modelos de rugosidad "fuerte" para realizar una comparación con el modelo de Arnau por semejanza geométrica. Debido a las limitaciones de la teoría de la perturbación, el conjunto de casquetes semi-esféricos que modelan el efecto rugoso de un cristal resonador de cuarzo en el modelo de Arnau, no pueden ser empleados como superficie rugosa en el modelo de rugosidad "suave" de Daikhin et Urbakh. Sus ecuaciones vienen descritas por parámetros distintos a los del modelo de Arnau, por lo que se deberá buscar una equivalencia entre ellos. Los parámetros de los modelos de Daikhin et Urbakh y Etchenique son:  $L_r$  para representar la dimensión vertical y  $\zeta$  para representar la distancia entre inhomogeneidades. El modelo de Arnau, en cambio, depende de tres parámetros:  $a_r$ ,  $h_r$  y  $r_r$ , como se ha explicado anteriormente.

Para comparar los modelos de Arnau y los modelos de rugosidad "fuerte" de Daikhin et Urbakh y Etchenique, se igualarán las dimensiones verticales, por lo que consideraremos a partir de ahora que  $L_r=h_r$ . Para hallar la equivalencia entre los distintos modelos respecto a las dimensiones horizontales, se estudió la geometría de los mismos. Como se desprende de la Figura 3.17, si consideramos un corte transversal y analizamos el modelo de Arnau unidimensionalmente, la distancia media entre inhomogeneidades viene dada por  $2(a_r - r_r)$ ; por lo tanto se puede establecer la equivalencia  $\zeta = 2(a_r - r_r)$ . Cabe destacar que cuando se trabaja con el modelo de Arnau, se dispone de un grado más de libertad; por ello, para encontrar la equivalencia con  $\zeta$ , es necesario dar valores a uno de los parámetros,  $r_r$  o  $a_r$ . En este caso, tras los estudios realizados en el epígrafe 3.1, se decidió dar a  $a_r$  valores en el margen de  $4.5\delta \leq a_r \leq 15\delta$ .

Esta elección viene determinada por la simple observación del comportamiento de las gráficas que relacionan  $R_L/X_L$  con  $r_r/a_r$ .

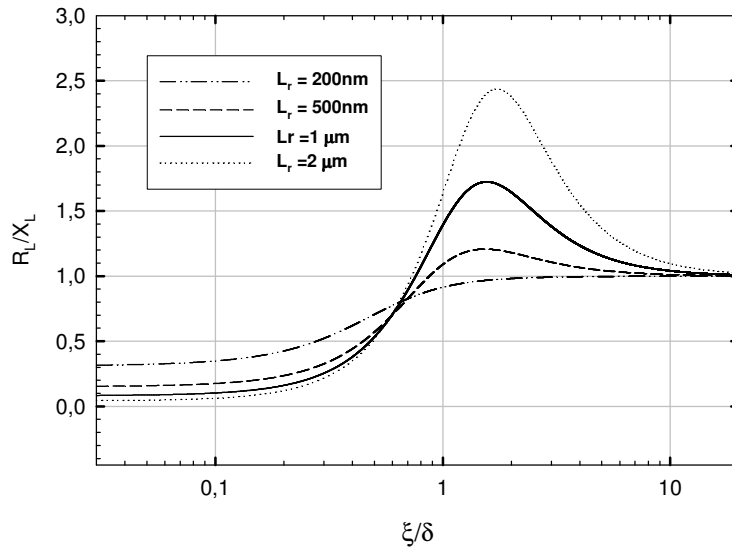


**Figura 3.17.** Equivalencia entre las dimensiones laterales del modelo de Arnau y los modelos de Daikhin y Etchenique.

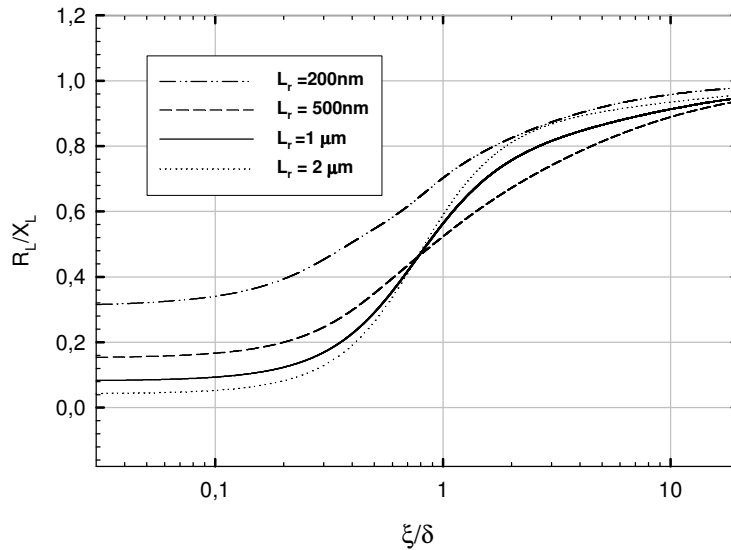
De la Figura 3.18 a la Figura 3.21 se ha representado el cociente  $R_L/X_L$  en función de la dimensión lateral para los tres modelos. En el caso del modelo de Arnau se ha representado para  $a_r = 4.5\delta$  y para  $a_r = 15\delta$ , por ser los límites superior e inferior del margen en el que el modelo de Arnau se comporta de forma similar a los modelos de Daikhin y Etchenique. Es preciso destacar que, mientras que en las representaciones de los modelos de Daikhin et Urbakh y Etchenique el eje de abscisas viene en unidades de  $\xi/\delta$ , en la representación del modelo de Arnau viene en unidades de  $2(a_r - r_r)/\delta$ .

De la Figura 3.18 y la Figura 3.19 se desprende que el cociente  $R_L/X_L$  en los modelos de rugosidad de Daikhin et Urbakh y Etchenique es muy similar. A pesar de ello, existen diferencias apreciables. Mientras que en el modelo de Etchenique la respuesta es siempre creciente y tiende asintóticamente a 1, en el modelo de Daikhin et Urbakh, la curva tiene un máximo mayor que 1 para luego decrecer asintóticamente hasta 1. Contrastando la Figura 3.18 y la Figura 3.19 con las representadas para el modelo de Arnau (Figura 3.20 y Figura 3.21) se puede constatar un hecho bastante significativo: cuando  $a_r = 4.5\delta$  el modelo de Arnau tiende a comportarse de una forma muy similar al modelo Daikhin-Urbakh, mientras que si el valor de  $a_r$  crece, llega un momento, en nuestro caso  $a_r = 15\delta$ , en el que la relación  $R_L/X_L$  deja de comportarse de forma similar al modelo de Daikhin-Urbakh y comienza a parecerse a la respuesta de Etchenique. Debido a la complejidad de los modelos, es difícil dar una explicación a este comportamiento.

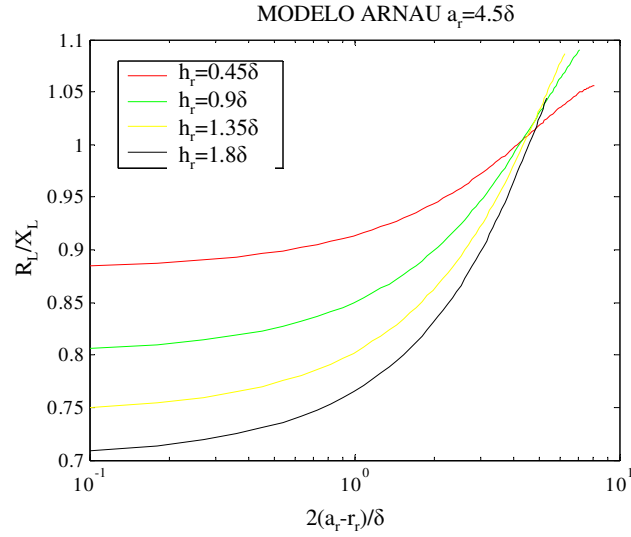




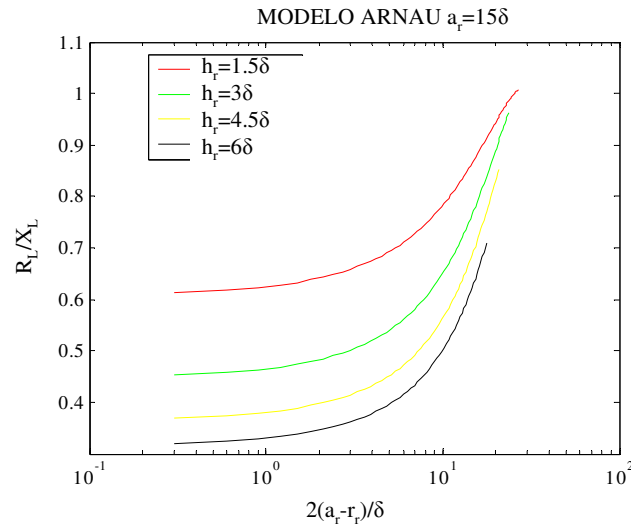
**Figura 3.18.** Evolución de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $\xi/\delta$  predicha por el modelo de Daikhin



**Figura 3.19.** Evolución de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $\xi/\delta$  predicha por el modelo de Etchenique.



**Figura 3.20.** Evolución de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $2(a_r-r_r)/\delta$  predicha por el modelo de rugosidad de Arnau para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 4.5\delta$ .



**Figura 3.21.** Evolución de la relación  $R_L/X_L$  en función de  $2(a_r-r_r)/\delta$  predicha por el modelo de rugosidad de Arnau para distintos valores de  $h_r$  con  $a_r = 15\delta$ .

### 3.4 Estudio del Término de Stokes

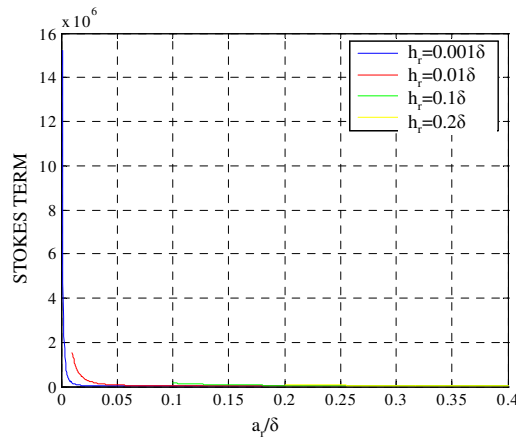
Como se ha comentado anteriormente, las ecuaciones descritas en el modelo de Arnau no han sido resueltas para condiciones de contorno armónicas, es decir, no se han considerado las posibles interacciones entre casquetes vecinos. Así, simplemente se ha realizado el cálculo de la solución para un casquete aislado, y posteriormente para extenderlo al resto de la superficie del cristal se ha multiplicado por el número de casquetes total dispuesto sobre la superficie del cristal de cuarzo. Esta aproximación provoca un efecto indeseado en el llamado término de Stokes. Este término, primer sumando de la parte real de la impedancia acústica de Arnau, tiene la forma:

$$3\pi\eta(nh_r) = \frac{3\pi\eta(h_r)}{2\sqrt{3}a_r^2} \quad (3.2)$$

siendo  $n$ , la densidad de casquetes, la cual viene dada por :

$$n = \frac{1}{2\sqrt{3}a_r^2} \quad (3.3)$$

El factor  $n$  no aparece en el llamado término de Stokes original (calculado para un solo casquete) y se introduce al sumar directamente las respuestas de todos los casquetes. Cuando se trabaja con valores de apotemas pequeños, el término cuadrático del denominador,  $a_r^2$ , domina y el término de Stokes se vuelve inestable tendiendo a infinito tal y como se observa en la Figura 3.22. En la Figura 3.23 se ha representado un zoom de la zona inestable.



**Figura 3.22.** Evolución del término de Stokes de la parte real de la impedancia de carga acústica predicha por el modelo de Arnau en función de  $a_r/\delta$

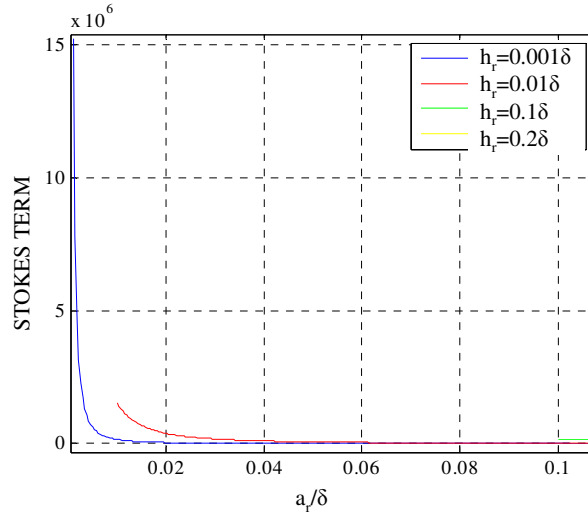


Figura 3.23. Zoom de la Figura 3.22

Es por ello que este modelo no se comporta de forma lógica con apotemas excesivamente pequeños.

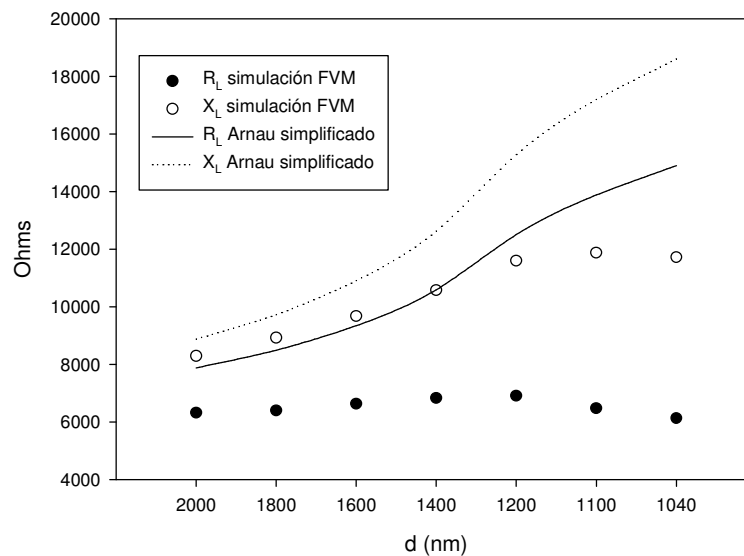
La exactitud de los resultados predichos por el modelo para valores de  $a_r$  muy pequeños no está contrastada y debería de realizarse un desarrollo experimental para comprobar en que medida esta aproximación introduce error en el modelo.

### 3.5 Comparación del Modelo de Arnau con simulaciones realizadas con el Método de los Volúmenes Finitos

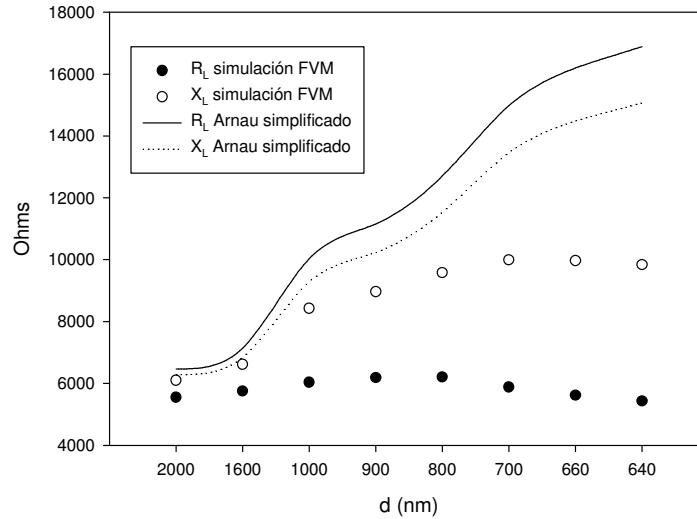
A pesar de que el estudio de superficies rugosas mediante simulaciones basadas en el método numérico de los volúmenes finitos (FVM, 'Finite Volume Method') se describirá, comentará y discutirá ampliamente en apartados posteriores de este trabajo, se ha creído conveniente incluir a continuación ciertos resultados obtenidos en estas simulaciones. Dichos resultados sirven para comparar los valores de impedancia acústica predichos por el modelo de Arnau con los resultados obtenidos simulando dichas superficies numéricamente. En estas simulaciones, a diferencia de los que sucede en el modelo de Arnau, se tiene en cuenta el efecto de interferencia entre los casquetes y no se realiza ninguna simplificación (linealización) de la ecuación de Navier-Stokes. Por lo tanto, se pueden suponer muy próximas a los resultados experimentales.

De la Figura 3.24 a la Figura 3.28 se representa tanto la parte real como la imaginaria de la impedancia acústica obtenida mediante el modelo de Arnau y mediante simulaciones FVM en función de la distancia entre los centros de los casquetes. En cada una de las figuras el radio del casquete tiene un valor concreto, que va desde los 500 nm en la Figura 3.24 a los 50 nm en la Figura 3.28.

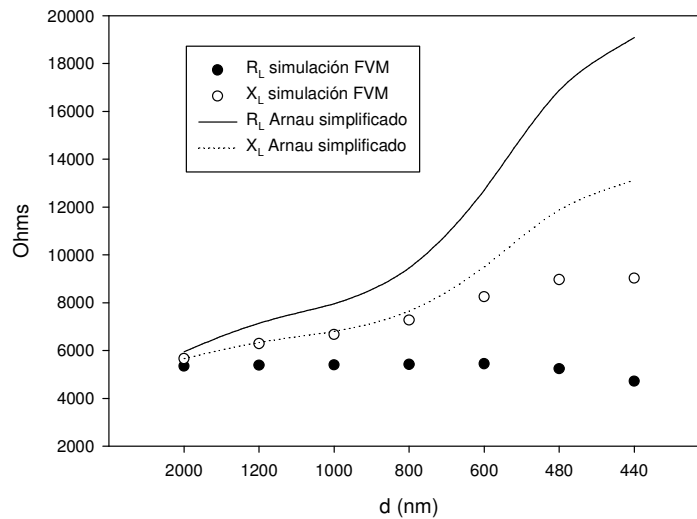
En estas figuras, se puede apreciar claramente que cuando las distancias entre casquetes son grandes, los valores de impedancia predichos por el modelo de Arnau se aproximan asintóticamente a los resultados de las simulaciones FVM. En cambio, cuando las distancias entre casquetes se reducen, las diferencias entre el modelo de Arnau y las simulaciones FVM se hacen más patentes. Estas diferencias se deben a que el modelo de Arnau no tiene en cuenta el efecto de interferencia entre casquetes.



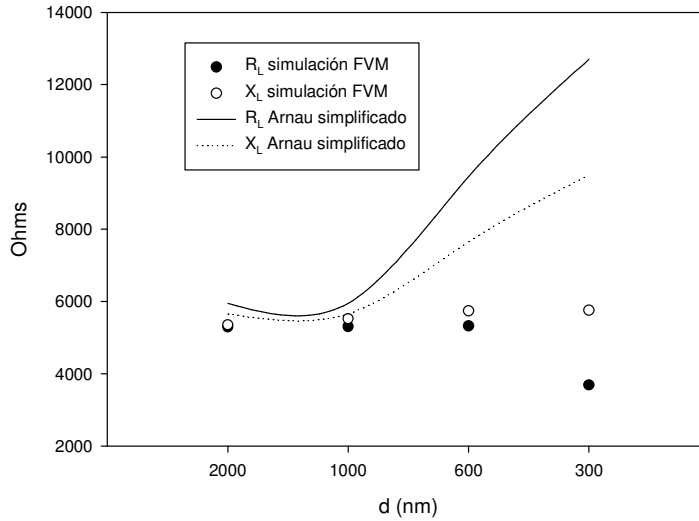
**Figura 3.24.** Comparación entre la parte real e imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau simple y los resultados obtenidos en simulaciones de volúmenes finitos en función de la distancia de separación entre los centros de los casquetes para un radio de casquetes de 500 nm.



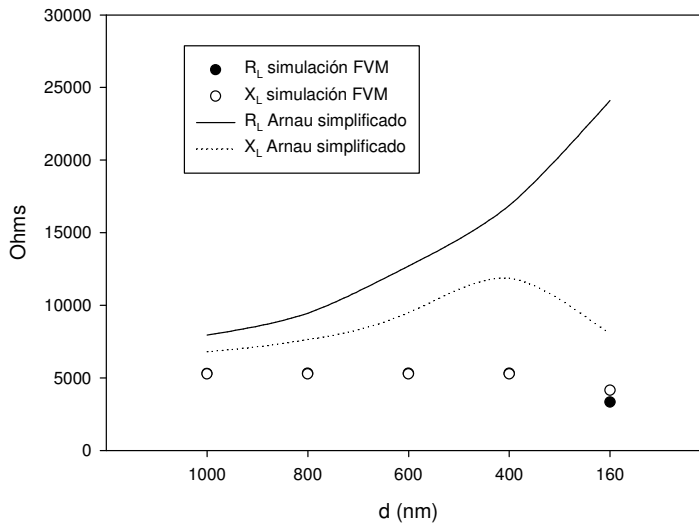
**Figura 3.25.** Comparación entre la parte real e imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau simple y los resultados obtenidos en simulaciones de volúmenes finitos en función de la distancia de separación entre los centros de los casquetes para un radio de casquetes de 300 nm.



**Figura 3.26.** Comparación entre la parte real e imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau simple y los resultados obtenidos en simulaciones de volúmenes finitos en función de la distancia de separación entre los centros de los casquetes para un radio de casquetes de 200 nm.



**Figura 3.27.** Comparación entre la parte real e imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau simple y los resultados obtenidos en simulaciones de volúmenes finitos en función de la distancia de separación entre los centros de los casquetes para un radio de casquetes de 100 nm.



**Figura 3.28.** Comparación entre la parte real e imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau simple y los resultados obtenidos en simulaciones de volúmenes finitos en función de la distancia de separación entre los centros de los casquetes para un radio de casquetes de 50 nm.

### 3.6 Conclusión

A diferencia de los modelos de Daikhin y Etchenique [Daikhin02, Etchenique00] para rugosidades pronunciadas, que se basan en la ecuación de Brickman aplicada sobre un medio poroso, el modelo de Arnau se basa en la aplicación de la ecuación de Navier-Stokes a una superficie semi-esférica oscilante inmersa en un medio líquido. De esta forma el modelo se adecua más a lo que sucede realmente en la superficie de un cristal resonador de cuarzo. Asimismo, mientras que los modelos basados en la ecuación de Brickman anteriormente mencionados sólo consideran dos dimensiones características de la rugosidad, el modelo de Arnau considera tres, permitiendo un grado más de libertad en la elección de las propiedades geométricas de la superficie rugosa y, por tanto, una mayor variedad de posibilidades de modelado. Sin embargo, se hace necesario un estudio más profundo para evaluar las ventajas e inconvenientes del modelo. En este sentido, la inestabilidad del término Stokes, para valores de  $a_r$  pequeños, introduce la necesidad de resolver las ecuaciones planteadas por Arnau con condiciones de contorno armónicas, con el fin de contrastar y evaluar el error cometido por la aproximación de adición directa.



## **4. Aportación. Parte 2: Estudio de la rugosidad de un recubrimiento polimérico mediante el modelo de Arnau**

### **4.1 Introducción**

En esta aportación se profundiza en la discusión de un experimento realizado en una tesis doctoral previa [Jiménez04-01]. En particular se estudia la rugosidad superficial de un recubrimiento polimérico electropolimerizado así como su efecto sobre los valores efectivos de las propiedades físicas de dicho polímero mediante el uso del modelo de Arnau.

El objetivo es evaluar la posible aplicación práctica de este modelo en la explicación de fenómenos relacionados con la rugosidad en experimentos reales.

El polímero electropolimerizado experimental es el PEDOT (Poli (3,4-etilendioxitiofeno)). Se trata de un polímero que pertenece a la familia de los politiofenos, valorados por su alta conductividad y su gran estabilidad química y térmica. Debido a su elevada conductividad eléctrica los politiofenos se usan en una gran variedad de aplicaciones: circuitos plásticos, fotodiodos [Arias99], biosensores [Piro01], recubrimientos antiestáticos [Goenendaal00], recubrimientos protectores contra la corrosión [Rammelt01], etc. Sin embargo, no se han usado extensivamente debido a los cambios de sus propiedades con el transcurso del tiempo, con el uso o en contacto con el entorno. Además, se sabe relativamente poco sobre las propiedades mecánicas (módulo de cizalla) de estos polímeros en un rango de espesores que varían entre los nanómetros y los micrómetros en función de las aplicaciones.

La técnica QCR, 'Quartz Crystal Microbalance', puede resultar útil para estimar estas propiedades y su cambio durante el crecimiento del polímero. Además, es posible analizar otros fenómenos relacionados con la estructura macroscópica del recubrimiento polimérico que pueden influir en la respuesta del sensor; en particular el efecto rugoso, íntimamente relacionado con la porosidad y el grado de hidratación.

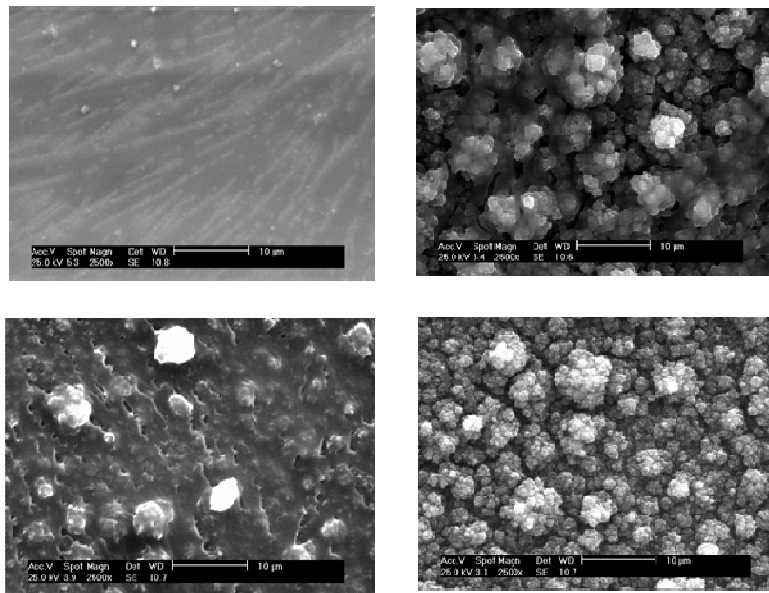
En este sentido, Hillman y sus colaboradores han descrito los efectos viscoelásticos de los politiofenos mediante una microbalanza electroquímica de cristal de cuarzo (EQCM, 'Electrochemical Quartz Crystal Microbalance') [Hillman97, Bandey97, Hillman01], incluyendo la evolución de régimen gravimétrico a régimen viscoelástico en la respuesta de los films de poli(3-metiltiofeno) [Skompska00] y el estudio del

fenómeno de la resonancia mecánica del film de poli(3-metiltiofeno) en contacto con una solución electrolítica [Hillman98]. Ivasta y colaboradores han estudiado la polimerización electroquímica del 3,4-etiléndioxitiofeno (EDOT) en diferentes medios electrolito-solvente [Kvarnström99]. Recientemente, se ha demostrado que la electropolimerización de polímeros conductores como los tiofenos, sobre la superficie de uno de los electrodos de oro de una EQCM produce superficies porosas y fibrosas, cuyo grado de porosidad depende del polímero, la técnica usada para la deposición, la velocidad del crecimiento del polímero, etc [Etchenique00, Bund04].

#### 4.2 Descripción del Experimento: Material y Métodos

El experimento que se va a discutir en este epígrafe consiste en el crecimiento electroquímico del PEDOT en acetonitrilo con tetrabutilamonio mediante una microbalanza de cuarzo electroquímica (EQCM). Se usó una celda electroquímica estándar con tres electrodos y un potenciostato-galvanostato IMP88 JAISSE. El electrodo de referencia era un electrodo Ag/AgCl y todos los potenciales usados están referenciados a él. Se usó un contraelectrodo de platino. La solución de electropolimerización contenía 47 mM de EDOT y 0.1 M de TBAClO<sub>4</sub> en acetonitrilo. Los films de PEDOT fueron depositados galvanostáticamente usando una densidad de corriente de 212,2  $\mu\text{A cm}^{-2}$ . Esta densidad de corriente fue escogida para obtener una deposición de PEDOT que cubriese la superficie del electrodo homogéneamente. Se registró y almacenó el potencial del electrodo de trabajo durante la polimerización galvanostática y se mantuvo constante durante la electropolimerización. Se emplearon cristales de cuarzo de corte AT de 10 MHz y de 14 mm de diámetro (International Crystal Manufacturing Company Inc., Oklahoma City, OK, USA; Cat. 31210). El electrodo era de oro sobre una capa previa de cromo y su diámetro era de 0.5 cm. Se usó una celda de teflón con dos o-rings para mantener solamente una de las caras del cristal de cuarzo en contacto con la solución electrolito. Se adquirió el espectro de admitancia del sensor QCR, conductancia y susceptancia, en las proximidades de la frecuencia de resonancia mediante un analizador de redes HP5100A con una tarjeta IEEE-488 (National Instruments GPIB PCIIA). Se utilizó un software de adquisición desarrollado en el entorno Labview® (National Instruments). Durante la electropolimerización del PEDOT, se adquirió el espectro de admitancias cada 1.5 segundos. Se realizaron medidas espectrales en los siguientes casos: el cristal al aire sin recubrimiento, el cristal sin recubrimiento en contacto con la solución electrolito y el cristal

recubierto con el film de PEDOT en contacto con el líquido electrolito durante la electropolimerización. Se realizó también un estudio de microscopía electrónica de barrido (SEM, Scanning Electron Microscopy) de las muestras de polímero a diferentes valores de la densidad de carga de electro-polimerización (Figura 4.1). Como se puede observar en la Figura 4.1, se producen cambios en la morfología de la superficie del PEDOT durante la deposición. La Figura 4.1 parece indicar que la superficie del recubrimiento se hace más compacta conforme la densidad de carga crece.



**Figura 4.1.** Imagen SEM de varios films de PEDOT sobre el electrodo de oro de un cristal de cuarzo a diferentes densidades de carga:  $12\text{-}20\text{ mC cm}^{-2}$  (figura superior izquierda);  $200\text{ mC cm}^{-2}$  (figura inferior izquierda);  $400\text{ mC cm}^{-2}$  (figura superior derecha);  $900\text{ mC cm}^{-2}$  (figura inferior derecha).

### 4.3 Discusión

A medida que el polímero va creciendo sobre la superficie del cristal, pasa a través de diferentes regímenes acústicos: régimen gravimétrico o zona Sauerbrey y régimen viscoelástico. En el primer caso solamente tiene sentido el cálculo de la masa de polímero pero no de las propiedades viscoelásticas; mientras que el estudio de éstas últimas sólo tiene sentido

en el régimen viscoelástico. Esta es la razón por la que la discusión del experimento se ha dividido en dos partes.

En la primera de ellas, la correspondiente al régimen gravimétrico, se extraen los valores de los parámetros del modelo de rugosidad de Arnau:  $a_r$ ,  $h_r$ ,  $r_r$ , a partir de las medidas del espectro de admitancias realizadas en los primeros instantes del experimento, esto es, en el régimen gravimétrico. En la segunda, se emula el crecimiento del recubrimiento de PEDOT y se comprueba la influencia de la rugosidad de la capa polimérica en el valor efectivo de las propiedades viscoelásticas de dicha capa. Para ello se usa también el modelo de rugosidad de Arnau. Una simulación parecida se ha realizado ya en otro trabajo utilizando los modelos de Daikhin et Urbakh y Etchenique [Jiménez04-01].

#### **4.3.1 Densidad de Masa, Rugosidad Superficial y Eficiencia en Régimen Gravimétrico**

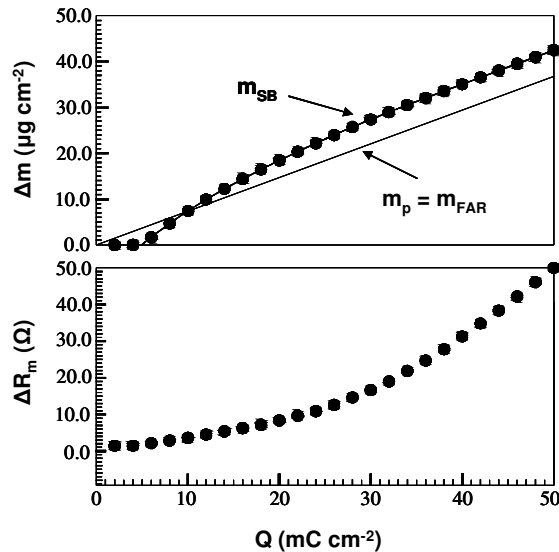
La Figura 4.2 muestra una representación detallada de los instantes iniciales del crecimiento ( $Q < 50 \text{ mC cm}^{-2} - t < 235 \text{ s}$ ), donde se puede asumir régimen gravimétrico. La densidad superficial de masa,  $m_{SB}$ , obtenida con la ecuación de Sauerbrey, ecuaciones (4.1) y (4.2), a partir de las correspondientes variaciones de frecuencia se representa en el panel superior junto con la densidad de masa teórica,  $m_p = m_{FAR}$ , obtenida a partir de la ley de Faraday. La variación de resistencia tomada como el recíproco de la diferencia de los máximos de conductancia entre el cristal con polímero depositado, en cada instante considerado, y el cristal en contacto sólo con el líquido se ha representado en el panel inferior.

Para algunos autores, el régimen gravimétrico es aquél en el cual no se producen cambios en la variación de resistencia [Hillman01]. Se debe precisar, que el régimen gravimétrico acústico ocurre cuando las propiedades viscoelásticas del recubrimiento no se reflejan en la respuesta del sensor. En algunos casos, es posible obtener cambios en la resistencia debidos a contribuciones diferentes de los efectos viscoelásticos mientras el sensor sigue trabajando en régimen gravimétrico, incluso con cambios en la resistencia [Bund02]. Esto puede suceder, por ejemplo, cuando se esta depositando un recubrimiento con superficie rugosa.

De la Figura 4.2 se desprende que la densidad de masa que proporciona la ecuación de Sauerbrey no coincide con la densidad de masa que proporciona la ecuación de Faraday. Además, en los primeros segundos del experimento el sensor no detecta masa. Cuando comienza a detectarla, la pendiente de la evolución de la densidad de masa de Sauerbrey con respecto al tiempo supera en un factor próximo a dos a la pendiente de la

densidad de masa predicha por la ecuación de Faraday, incluso suponiendo una eficiencia en el proceso del 100%. Un efecto muy parecido ha sido descrito recientemente por Bund en una deposición electrostática de PEDOT [Bund02].

La ausencia de detección de masa por parte del sensor en los primeros instantes del experimento puede explicarse por el hecho de que al principio, las cadenas de monómeros formadas no son lo suficientemente largas para precipitar en la superficie del cristal, por lo tanto no son detectables. Cuando estas cadenas empiezan a hacerse más largas, precipitan y provocan un incremento de la evolución en la masa de Sauerbrey. Este crecimiento debería disminuir paulatinamente hasta que las pendientes de las masas de Sauerbrey y Faraday coincidieran. Sin embargo, esto no sucede y la masa detectada por el sensor es siempre superior a la predicha por Faraday. A continuación, se trata de explicar este fenómeno suponiendo que el incremento de masa que detecta el sensor es debido a la rugosidad de la superficie del recubrimiento.



**Figura 4.2** Detalle de la evolución de la densidad de masa correspondiente a la ecuación de Sauerbrey y de la variación en el máximo de la conductancia recíproca (variación en la resistencia dinámica) hasta 50 mC cm<sup>-2</sup>

De acuerdo con la ecuación (3.1), en el modelo de Arnau, la rugosidad tiene un efecto aditivo tanto en la parte real como en la imaginaria de  $Z_2$  respecto a la impedancia acústica de una superficie plana (términos de Kanazawa). Si se asume que se trabaja en régimen gravimétrico, los

cambios en la parte imaginaria de dicha impedancia se deberán a la masa del recubrimiento y a la masa extra de líquido desplazada por la rugosidad, mientras que los cambios en la parte real serán debidos exclusivamente al fenómeno de la rugosidad. Cuando se considera que se trabaja en régimen gravimétrico, la variación en la frecuencia de resonancia, tomada como la diferencia entre la frecuencia de resonancia del sensor cargado y sin cargar, se debe a la suma de dos contribuciones, la del recubrimiento y la del medio semi-infinito situado sobre él (ecuación (4.1)):

$$\Delta f_s|_{\text{liquido+recubrimiento}} = \Delta f_s|_{\text{liquido}} + \Delta f_s|_{\text{recubrimiento}} = -\frac{f_o}{\pi Z_{cq}} \sqrt{\frac{\rho_2 \eta_2 \omega}{2}} - C_{SB} \rho_1 h_1 \quad (4.1)$$

A su vez, la variación de la frecuencia de resonancia debida al recubrimiento, también se debe a dos contribuciones: la densidad de masa del recubrimiento y la masa de líquido por unidad de área desplazada por la rugosidad, que puede ser obtenida de la parte imaginaria de la ecuación (4.1).

La densidad de masa superficial del recubrimiento,  $m_p$ , es la suma de la densidad superficial de masa de la capa rugosa,  $m_{rp}$ , y la densidad superficial de masa de la capa uniforme  $m_{lp}$ , que se puede calcular de la forma :

$$m_{lp} = \rho_p h_{lp} \quad (4.2)$$

donde  $h_{lp}$  es el espesor de la capa uniforme y  $\rho_p$  es la densidad del recubrimiento. En una deposición electroquímica galvanostática, la densidad de masa superficial del recubrimiento,  $m_p = m_{lp} + m_{rp}$ , se puede estimar a partir de la carga y de la ley de Faraday:

$$m_p = \chi C_F I t \quad (4.3)$$

donde  $\chi$  es la eficiencia,  $C_F$  es la masa teórica depositada por unidad de carga, la cual se puede obtener a partir de la ley de Faraday como  $C_F = M/(F n^e)$ , donde  $M$  es la masa molar del monómero,  $F$  la constante de Faraday (9,6485 C/mol) y  $n^e$  es el número de electrones intercambiados en la reacción química,  $I$  es la densidad de corriente constante durante el experimento galvanostático y  $t$  el tiempo.

Por otra parte, el efecto de masa superficial asociado con la rugosidad,  $\Delta m^r$ , se puede obtener de la parte imaginaria de la ecuación (1.1) como sigue:

$$\Delta m^r = \frac{3}{4} \rho_2 \delta_2 \Delta S_r + \frac{1}{2} \rho_2 V_r = \frac{1}{2} \frac{\rho_2}{\rho_p} \left( \frac{9 \delta_2 h_r}{h_r^2 + 3r_r^2} + 1 \right) m_{rp} \quad (4.4)$$

donde,  $m_{rp}$  se puede determinar a partir de la densidad del polímero y del volumen del casquete:

$$m_{rp} = \rho_p V_r = \rho_p n \pi h_r (h_r^2 + 3r_r^2) / 6 \quad (4.5)$$

Como se ha comentado anteriormente, en régimen gravimétrico es posible predecir la contribución del recubrimiento a la variación de la frecuencia de resonancia gracias a la ecuación de Sauerbrey  $\Delta f_s^{\text{coating}} = -C_{SB} m_{SB}$ . La densidad superficial de masa de Sauerbrey,  $m_{SB}$ , incluye la contribución de la densidad de masa del recubrimiento y el efecto de masa superficial por unidad de área debido a la rugosidad:

$$m_{SB} = m_p + \Delta m^r = m_{ip} + m_{rp} + \Delta m^r \quad (4.6)$$

La variación en la parte real de la impedancia acústica de carga de una superficie rugosa en relación con la de una superficie plana se puede expresar en función de la densidad superficial de masa de la capa rugosa  $m_{rp}$ :

$$\frac{\Delta R_2}{\omega_0} = \frac{1}{\omega_0} \left( 3\pi \eta_2 (nh_r) + \frac{3}{2} \frac{\eta_2}{\delta_2} \Delta S_r \right) = \frac{9}{2} \frac{\rho_2}{\rho_p} \left( \frac{2\delta_2^2 + \delta_2 h_r}{h_r^2 + 3r_r^2} \right) m_{rp} \quad (4.7)$$

donde  $\omega_0$ , es la frecuencia de resonancia del compuesto resonante.

Si se supone que  $a_r = r_r$ , es posible obtener los parámetros característicos del modelo de rugosidad de Arnau,  $h_r$ ,  $r_r$  y el espesor de la capa de polímero uniforme  $h_{ip}$  a partir de las ecuaciones (4.6)-(4.11) en función de  $\Delta R_2$ ,  $m_{SB}$  y  $m_p$ , que se pueden obtener a partir de las magnitudes experimentales  $Y$ ,  $\Delta f_s$  e  $I$  respectivamente, como sigue:

$$h_r = \left( -b + \sqrt{b^2 + 4c} \right) / 2 \quad (4.8)$$

$$r_r = \sqrt{E h_r (2\delta_2^2 + \delta_2 h_r)} \quad (4.9)$$

$$m_{rp} = \rho_p \frac{\pi}{2\sqrt{3}} \frac{h_r}{r_r^2} \left( \frac{h_r^2 + 3r_r^2}{6} \right) \quad (4.10)$$

$$h_{ip} = \frac{1}{\rho_p} (m_p - m_{rp}) \quad (4.11)$$

donde  $b$  y  $c$  tienen las siguientes expresiones:

$$b = \frac{6E\delta_2^2 + 9\delta_2 - 9D\delta_2}{3E\delta_2 + 1}; c = \frac{18D\delta_2^2}{3E\delta_2 + 1}$$

$$\text{con } D = \frac{\omega_0}{\Delta R_2}(m_{SB} - m_p) \text{ y } E = \frac{9\pi\rho_2}{24\sqrt{3}} \frac{\omega_0}{\Delta R_2}$$

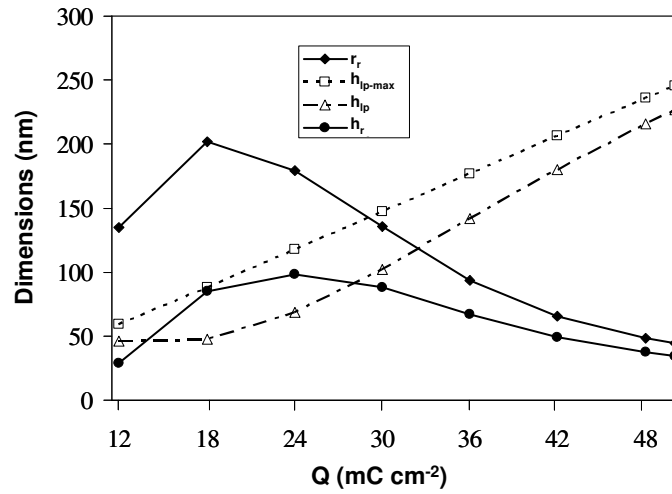
La Figura 4.3 y la Figura 4.4 se obtienen aplicando las ecuaciones anteriores a los datos del experimento bajo estudio. En la Figura 4.3 se observa la evolución de los parámetros del modelo de rugosidad de Arnau,  $h_r$ ,  $r_r$ , y el espesor de la capa de polímero lisa,  $h_{lp}$ . Por razones de comparación se incluye también el espesor máximo de la capa polimérica en el caso de que toda la masa de Faraday se depositara uniformemente ( $h_{lp-max}=m_{FAR}/\rho_p$ ). La evolución de los parámetros de la rugosidad indica que al principio del experimento el recubrimiento está formado por una capa lisa de poco espesor y unas inhomogeneidades relativamente grandes situadas sobre ella ( $h_r \approx 100nm$ ,  $r_r \approx 200nm$ ,  $h_{lp} \approx 50nm$ ). Conforme el recubrimiento crece, la capa lisa aumenta en espesor mientras que los parámetros de la rugosidad decrecen ( $h_r \approx 35nm$ ,  $r_r \approx 45nm$  y  $h_{lp} \approx 227nm$ ). El efecto de la rugosidad decrece, pero mantiene un valor no despreciable en el intervalo de densidad de carga considerado, es decir en el régimen gravimétrico del experimento. Esto se puede observar en la Figura 4.4 donde se representan las densidades de masa predichas por Sauerbrey y por la ley de Faraday. Además se representan la densidad de masa de la capa lisa,  $m_{lp}$ , la densidad de masa de la capa rugosa,  $m_{rp}$ , y el efecto de masa debido a la rugosidad,  $\Delta m^r$ . La Figura 4.4 muestra que el efecto de masa debido a la rugosidad mantiene su valor absoluto, pero su peso relativo en la masa real disminuye conforme crece el polímero. Para una densidad de carga de  $50 \text{ mC/cm}^2$  el peso relativo del efecto de masa de la rugosidad es del 13% de la masa de Faraday.

Este análisis indica que la densidad de masa obtenida a partir de la ecuación de Sauerbrey incluyendo el efecto de la rugosidad, se ajusta bien con la masa predicha por la ecuación de Faraday para una eficiencia en el proceso del 100% en el rango de carga considerado. Cuando el espesor del polímero se hace mayor, los efectos viscoelásticos empiezan a no ser despreciables, y se abandona el régimen gravimétrico. Las ecuaciones usadas en este apartado dejan de ser válidas y el análisis del efecto de la rugosidad durante el régimen acústico viscoelástico se complica.

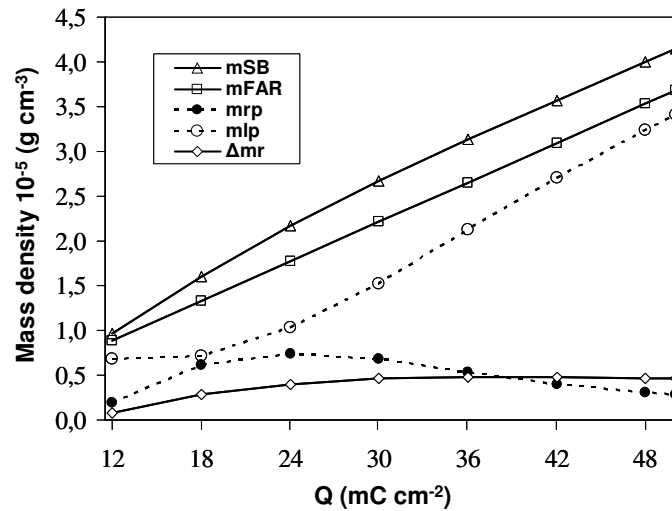
Para facilitar su discusión, el efecto de la rugosidad sobre las propiedades efectivas del recubrimiento será evaluado mediante una herramienta de simulación desarrollada durante el periodo de formación



como personal investigador que ha desembocado en la escritura de esta tesis.



**Figura 4.3** Evolución de las dimensiones de la rugosidad de acuerdo con el modelo de Arnau para los datos experimentales de la Figura 4.1



**Figura 4.4** Evolución de las diferentes contribuciones de masa durante el régimen gravimétrico de la Figura 4.1, asociado con un recubrimiento rugoso.

### ***4.3.2 Contribución de la Rugosidad sobre las Propiedades Viscoelásticas Efectivas del Recubrimiento***

El objetivo de este estudio es analizar el efecto que tiene el fenómeno de la rugosidad de la capa creciente de polímero en el valor efectivo de las propiedades viscoelásticas extraídas. Se han consultado en la literatura artículos donde se estudia la tendencia de las características geométricas y físicas de una capa electropolimerizada de PEDOT. De estos estudios se desprende que el recubrimiento polimérico está formado por una capa más o menos compacta y una serie de inhomogeneidades en su superficie. La dimensión vertical de estas inhomogeneidades es mayor que la de la capa compacta para las primeras etapas del experimento. A medida que transcurre éste y el polímero va creciendo, el espesor de la capa compacta se va haciendo mayor que el de la capa rugosa.

En cuanto a la dimensión lateral de la capa rugosa, según la bibliografía [Bund04], puede aumentar o disminuir con el tiempo en función de factores como el medio semi-infinito en el que se desarrolle el experimento. Por esta razón, al igual que se hizo en la tesis doctoral anteriormente mencionada [Jiménez04-01], se tratarán dos casos diferentes. En el primero de ellos se considerará que el tamaño del poro, es decir la dimensión lateral de la rugosidad, aumenta y en el segundo caso que disminuye.

Para analizar el efecto de la rugosidad sobre el valor de las propiedades viscoelásticas efectivas, se hará uso de un entorno de simulación implementado durante el desarrollo de esta tesis. En primer lugar se usará el entorno para reproducir el comportamiento de la respuesta resonante del conjunto cristal-recubrimiento liso - rugosidad polímero - medio semi-infinito siguiendo el modelo de cuatro capas de la Figura 1.6. Posteriormente se hará uso del algoritmo de extracción basado en el modelo TLM de tres capas implementado en el entorno para calcular las propiedades viscoelásticas efectivas del recubrimiento, es decir, aquellas en las que está incluido el efecto rugoso

Comparando la desviación de los valores de las propiedades efectivas del recubrimiento cuando se considera la rugosidad del mismo respecto de sus valores cuando ésta no se considera se puede llegar a conclusiones acerca del efecto que tiene el crecimiento inhomogéneo del polímero.

Para simular la respuesta de un compuesto como el de la Figura 1.6, es necesario partir de unos valores típicos de las propiedades físicas del recubrimiento, así como de su rugosidad en los distintos instantes de tiempo considerados durante el crecimiento del polímero. Consultando la bibliografía se obtienen los valores del espesor de la capa uniforme de PEDOT,  $h_p$  y de las dimensiones vertical,  $L_r$ , y horizontal,  $\zeta$ , de la

rugosidad superficial para los diferentes instantes de tiempo que se tienen en cuenta en el proceso de crecimiento del polímero [Bund02, Jiménez04-01]. Dichos valores, que caracterizan la rugosidad modelándola con las impedancias acústicas que proporcionan los modelos de Daikhin et Urbakh y Etchenique, se presentan en la Tabla 4.1. En la tabla se distinguen dos casos: porosidad creciente, SA, y porosidad decreciente, SD. Respecto a los valores de las propiedades viscoelásticas del recubrimiento, se tomaron valores típicos extraídos de la literatura:  $G'=10^6$  Pa y  $G''=10^5$  Pa [Jiménez04-01, Bund02, Hillman97, Hillman01]. Además, se consideró que su densidad es  $\rho = 1000$  kg/m<sup>3</sup>, y que el medio semi-infinito situado sobre el recubrimiento tenía las mismas propiedades que el agua.

Con todos estos datos, en la referencia [Jiménez04-01], se estudia el efecto de la rugosidad del polímero utilizando los modelos de Daikhin y Etchenique. En este trabajo de investigación se pretende realizar un estudio análogo para el modelo de Arnau [Arnau05]. Como se comentó en la aportación anterior, mientras que en los modelos de Daikhin y Etchenique se utilizan dos parámetros, en el modelo de Arnau se usan tres. Además, los significados físicos de los parámetros no coinciden totalmente. Es por ello que se necesita hallar una equivalencia con los dos ya existentes (Daikhin y Etchenique). En el apartado 3.2 de este mismo trabajo se ha comentado el problema y se ha propuesto la equivalencia:

$$\begin{aligned}
 h_r & \text{-----} \rightarrow L_r \\
 2(a_r - r_r) & \text{-----} \rightarrow \xi
 \end{aligned}$$

**Tabla 4.1.** Valor de las dimensiones características de la rugosidad basada en los modelos de Daikhin y Etchenique para cada uno de los instantes considerados en la simulación del crecimiento polimérico.

		$t_1(s)$	$t_2(s)$	$t_3(s)$	$t_4(s)$	$t_5(s)$	$t_6(s)$
SA	$h_p (nm)$	60	160	300	480	700	1080
	$L_r (nm)$	140	240	300	320	300	120
	$\xi (nm)$	35	48	50	52	60	65
SD	$h_p (nm)$	60	160	300	480	700	1080
	$L_r (nm)$	140	240	300	320	300	120
	$\xi (nm)$	65	60	52	50	48	35

De este modo, en la Tabla 4. 2 y en la Tabla 4. 3.se recogen los valores de las propiedades geométricas del recubrimiento para los casos de porosidad creciente y decreciente, respectivamente, según el modelo de Arnau.

**Tabla 4. 2.** Equivalencia de los parámetros extraídos de la tabla 1 para el modelo de Arnau y porosidad creciente (SA).

	$t_1$	$t_2$	$t_3$	$t_4$	$t_5$	$t_6$
$h_p (nm)$	60	160	300	480	700	1080
$h_{rp} (nm)$	140	240	300	320	300	120
$a_r (nm)$	1017.5	1024	1025	1026	1030	1032.5
$r_r (nm)$	1000	1000	1000	1000	1000	1000

**Tabla 4. 3.** Equivalencia de los parámetros extraídos de la tabla 1 para el modelo de Arnau y porosidad decreciente (SD).

	$t_1$	$t_2$	$t_3$	$t_4$	$t_5$	$t_6$
$h_p (nm)$	60	160	300	480	700	1080
$h_{rp} (nm)$	140	240	300	320	300	120
$a_r (nm)$	1032.5	1030	1026	1025	1024	1017.5
$r_r (nm)$	1000	1000	1000	1000	1000	1000

Como se puede observar en la Tabla 4. 2 y en la Tabla 4. 3, se ha tomado para  $r_r$  un valor de 1000 nm. Esta elección viene marcada por una característica propia del modelo de Arnau comentada en el apartado 3.2 de este mismo trabajo. El modelo de Arnau solamente se comporta de una forma parecida a los modelos de Daikhin y Etchenique en el margen dado por  $4.5\delta \leq a_r \leq 15\delta$ . Por ello, se ha tomado un valor de  $r_r$  que restrinja el valor de  $a_r$  a un valor próximo a 1000nm, que para la profundidad de penetración que se da en la simulación, aproximadamente 178 nm, equivale a  $a_r \approx 68$  nm. Este valor de  $a_r$  se encuentra dentro del rango  $4.5\delta \leq a_r \leq 15\delta$ . A partir del valor de  $r_r$  y mediante la equivalencia  $2(a_r - r_r) = \xi$ , se han obtenido los valores de  $a_r$  para los diferentes instantes del crecimiento polimérico. Es importante hacer notar que en esta simulación no se ha tenido en cuenta la densidad superficial de masa debida a la capa rugosa del modelo ya que dicha capa sólo se consideran

propiedades geométricas. En el régimen viscoelástico en el que se desarrolla la simulación, no es posible simplemente adicionar las densidades de masa de la capa lisa y la capa rugosa como sucede en régimen gravimétrico.

Una vez que se dispone de todos los datos necesarios para emular el comportamiento de un cristal resonador de cuarzo con un recubrimiento rugoso modelado según las ecuaciones propuestas por Arnau, se usa el entorno desarrollado para realizar la simulación. A continuación, se usa el mismo entorno para analizar los efectos de la rugosidad del polímero en las propiedades efectivas extraídas.

De la Figura 4. 5 a la Figura 4. 9 se muestran los valores de las propiedades efectivas, tanto para porosidad creciente, SA, como para porosidad decreciente, SD.

A partir de las figuras 4.5 a 4.10 se puede establecer una comparación entre las propiedades efectivas del recubrimiento,  $h_1^{eff}$ ,  $G_1'^{eff}$  y  $G_1''^{eff}$  extraídas por el algoritmo y los valores de las propiedades originales consideradas para la capa uniforme de PEDOT ( $G'=10^6$  Pa y  $G''=10^5$  Pa). Se observa que, si bien las propiedades efectivas del recubrimiento tienden a los valores de la capa uniforme, igualándose a éstos en los instantes finales del experimento; en los instantes iniciales, cuando el efecto rugoso tiene una importancia relativamente superior, las propiedades efectivas varían notablemente de las supuestas para la capa uniforme, de donde se deduce que en las etapas tempranas de la electropolimerización, el depósito irregular del recubrimiento sobre la superficie del cuarzo provoca unas variaciones importantes en los valores efectivos de las propiedades viscoelásticas. Posteriormente, cuando se produce un incremento en el espesor de la capa uniforme debido a la compactación del polímero, los efectos de la capa rugosa, ahora de un espesor notablemente inferior al de la capa uniforme, son mucho menos importantes y apenas influyen en la extracción de parámetros.

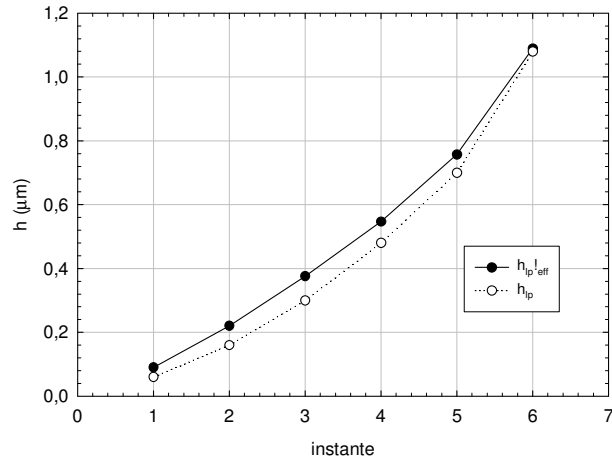
Las diferencias entre las simulaciones SD y SA son solamente ligeras variaciones en los valores de las propiedades, pero las tendencias seguidas por éstos son similares en ambas.

Los espesores efectivos extraídos, son ligeramente superiores a los espesores de la capa uniforme. Este fenómeno puede ser debido al espesor efectivo introducido por la capa rugosa.

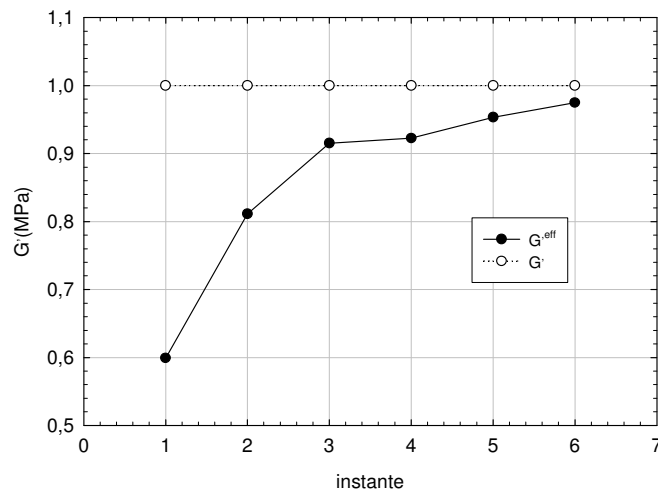
Si observamos las propiedades viscoelásticas efectivas,  $G'$  tiene valores inferiores al de la capa uniforme en los primeros instantes de la simulación, pero sigue una tendencia creciente para igualarse a ésta al final. En cambio,  $G''$  es superior en los primeros instantes, para ir decreciendo hasta igualarse al valor de la capa uniforme en los instantes

finales. Este comportamiento sólo varía en el primer instante de la simulación, cuando  $G''$  es inferior al valor esperado.

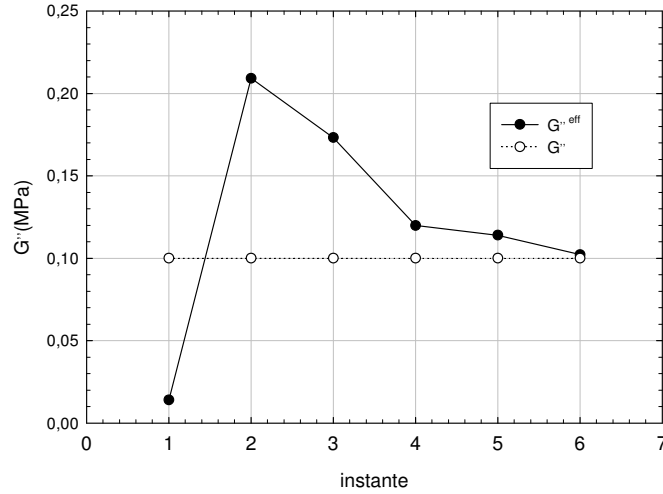
Por último, mencionar que los resultados obtenidos son muy similares a los obtenidos en trabajos previos para los modelos de Daikhin y Etchenique [Jiménez04-01].



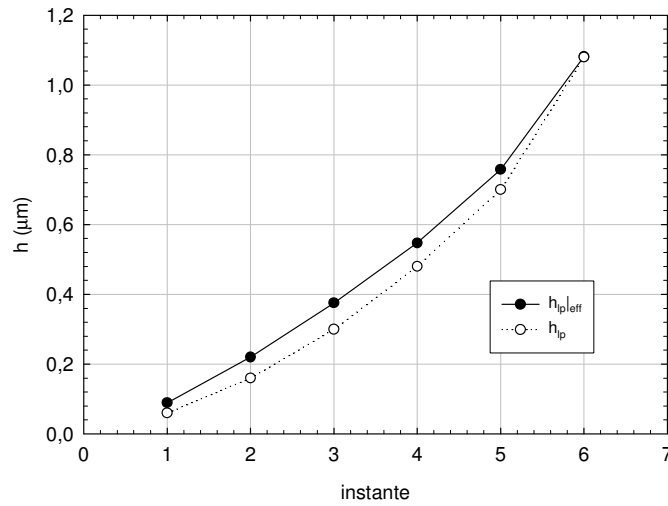
**Figura 4. 5.** Simulación SA. Comparativa de la evolución del valor de espesor efectivo,  $h_l^{eff}$ , y del espesor nominal,  $h_l$ , del recubrimiento para la simulación SA.



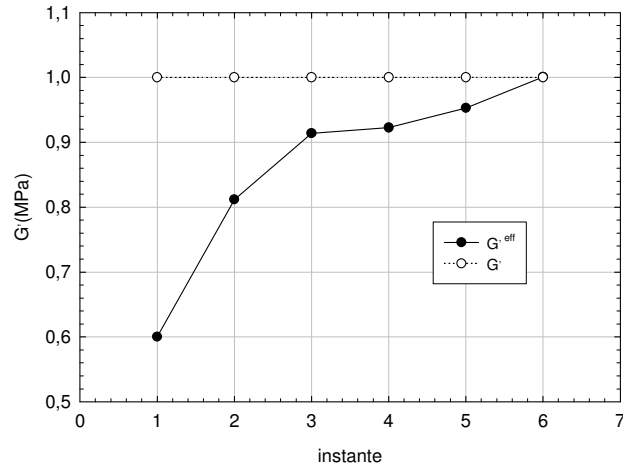
**Figura 4. 6.** Comparativa de la evolución del valor de la parte real del módulo de cizalla efectivo,  $G_l^{eff}$ , y de la parte real del módulo de cizalla nominal,  $G_l$ , del recubrimiento para la simulación SA.



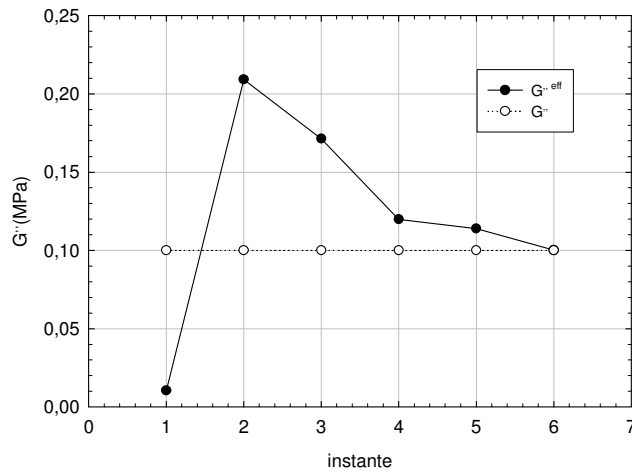
**Figura 4. 7.** Comparativa de la evolución del valor de la parte imaginaria del módulo de cizalla efectivo,  $G''^{eff}$ , y de la parte imaginaria del módulo de cizalla nominal,  $G''$ , del recubrimiento para la simulación SA.



**Figura 4. 8.** Comparativa de la evolución del valor de espesor efectivo,  $h_l^{eff}$ , y del espesor nominal,  $h_l$ , del recubrimiento para la simulación SD.



**Figura 4. 9.** Comparativa de la evolución del valor de la parte real del módulo de cizalla efectivo,  $G_1^{eff}$ , y de la parte real del módulo de cizalla nominal,  $G_1'$ , del recubrimiento para la simulación SD.



**Figura 4. 10.** Comparativa de la evolución del valor de la parte imaginaria del módulo de cizalla efectivo,  $G_1^{eff}$ , y de la parte imaginaria del módulo de cizalla nominal,  $G_1''$ , del recubrimiento para la simulación SA.



## 5. Aportación. Parte 3: Corrección del modelo de rugosidad de Arnau mediante la aplicación de Condiciones Contorno Armónicas

### 5.1 Introducción

Tal y como se ha puesto de manifiesto, el modelo simplificado de Arnau carece de la rigurosidad matemática necesaria en la aplicación de las condiciones de contorno. Los efectos de interacción entre casquetes en la respuesta del cristal resonador no se pueden ni se deben considerar aditivos, incluso aunque el número de Reynolds y la concentración espacial de partículas sean bajos. Por ello, se debe trabajar para describir de una forma más adecuada el problema de una distribución superficial periódica y oscilante de casquetes rígidos en contacto con un medio líquido. Este problema se puede generalizar como el cálculo de la fuerza de arrastre en el caso en el que sustituimos los casquetes por esferas.

A pesar de su simplicidad conceptual, el análisis del flujo a través de un array periódico de esferas se ha resistido a un análisis matemático sencillo. En este sentido, la mayoría de los autores que han tratado el tema, a lo largo de los años, se han decantado por el uso de la aproximación de fuerza puntual [Burgers41, Hasimoto59, Ishii79, Sangani88, Cheng97]. Esta aproximación consiste en suponer que el efecto inercial de una esfera sobre el fluido puede representarse como una fuerza puntual equivalente que actúa en el centro de dicha esfera. La validez de esta suposición se limita a los casos en los que las esferas en el array no están muy próximas entre sí. A pesar del uso de la aproximación de fuerza puntual, los cálculos en este tipo de problemas siguen conllevando una complejidad muy elevada. La principal dificultad fue apuntada por Burgers [Burgers41] y reside en el hecho de que el flujo debido a una fuerza puntual en tres dimensiones decae proporcionalmente a  $1/r$ , (siendo  $r$  la distancia a la fuerza); esta circunstancia provoca que la suma directa de los campos de velocidades de las partículas individuales en el array diverja. La solución a este contratiempo la propuso Hasimoto [Hasimoto59]: abandonar el sumatorio directo y afrontar el problema resolviendo las ecuaciones de Stokes modificadas para aceptar condiciones de contorno periódicas. El trabajo de Hasimoto supuso una base matemática sólida para el análisis del flujo estacionario a través de estructuras espacialmente periódicas sobre el que se cimentarían nuevas aportaciones. Ishii derivó las soluciones periódicas fundamentales de la ecuación de Stokes en el caso de una distribución

anisótropa de esferas [Ishii79]. Un buen número de trabajos sobre métodos numéricos de resolución se derivaron a partir de este desarrollo teórico [Ogata03, Ogata06-1, Ogata06-2]. Las aportaciones de Hasimoto e Ishii han dado lugar también a variados artículos de revisión, análisis y discusión [Sangani88, Sangani83, Pozrikidis96]. Otros trabajos han pretendido complementar estos estudios teóricos. Así, Cheng y Papanicolau trataron de incluir los efectos inerciales del término no lineal de la ecuación de Navier-Stokes mediante métodos perturbativos y asintóticos y la aproximación de Oseen [Cheng97]. Zick y Homsy derivaron una versión integral de las ecuaciones propuestas por Hasimoto que después resolverían numéricamente mediante el método de Galerkin [Zick82]. Esta versión integral permitió superar los inconvenientes de la aproximación de carga puntual, pudiéndose usar para arrays de esferas próximas entre sí.

Se han publicado trabajos basados en otros enfoques alternativos al expuesto por Hasimoto. Uno de los más notables es el desarrollo de Chapman y Higdon [Chapman92] basado en la expansión armónica obtenida por Lamb [Lamb32]. Este método consiste en reducir el dominio de aplicación de la ecuación para la velocidad y la presión. El dominio pasa a ser una celda que contiene una de las esferas cuya extensión periódica se quiere analizar. El trabajo de Chapman y Higdon se centra en proponer las condiciones de contorno apropiadas sobre las caras de dicha celda y sobre la superficie de la esfera para asegurar la integridad de la solución armónica espacial. Posteriormente tratan de resolver numéricamente las complejas sumas de funciones de armónicos esféricos positivos y negativos que Lamb propone en las ecuaciones del parágrafo 353 de su libro *Hydrodynamics*[Lamb32].

Otra de las alternativas es el método conocido como “Método de la Red de Boltzmann”, o en inglés “Lattice Boltzmann Method” [He97, Ladd01]. Se trata de una potente técnica numérica para el modelado de una gran variedad de problemas de mecánica de fluidos con geometrías complejas. Es un método discreto basado en la ecuación de transporte de Boltzmann, Ec.(5.1):

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial f}{\partial \vec{x}} \cdot \frac{\vec{p}}{m} + \frac{\partial f}{\partial \vec{p}} \cdot \vec{F} = \left( \frac{\partial f}{\partial t} \right)_{col} \quad (5.1)$$

donde  $\vec{F}$  es el campo de fuerza exterior actuando sobre las partículas,  $f$  la función de distribución,  $\vec{p}$  es el momento,  $t$  el tiempo,  $\vec{x}$  el vector de posición,  $m$  la masa y el subíndice *col* indica que se trata del efecto introducido por la colisión entre partículas. Se considera que un elemento de volumen típico de un fluido está compuesto por una serie de partículas

representadas por una función estadística de distribución de su velocidad en cada punto de la malla en la que se ha discretizado el fluido. El tiempo también se cuenta en pasos discretos. Las partículas fluidas pueden colisionar entre sí durante su movimiento. Las reglas que gobiernan las colisiones se diseñan para que el promedio temporal del movimiento de las partículas sea consistente con la Ecuación de Navier-Stokes [Aaltosalmi05].

La expansión por multipolos propuesta por Martynov pasa por ser otra de las opciones para el estudio del problema [Martynov98, Martynov01, Martynov02, Martynov05, Martynov07]. El autor trata de obtener una versión periódica de los multipolos usando la técnica descrita por Berdichevskii que permita incluir condiciones de contorno explícitas. Posteriormente, aprovecha las simetrías del array de esferas para simplificar notablemente la expresión del sumatorio de multipolos de la ecuación que describe la velocidad del fluido. No obstante, es un método de una complejidad elevada.

A pesar de la existencia de numerosas opciones, nos basaremos en la idea de Hasimoto para tratar de proponer una solución adecuada al caso que nos ocupa. Esta elección viene determinada por la naturaleza principalmente numérica de los métodos de Boltzmann, Chapman y Martynov (multipolos), que nos condicionan en nuestra intención de obtener una fórmula analítica cerrada de la impedancia acústica del resonador incluyendo efectos rugosos. Aunque el método de Hasimoto también puede ser resuelto desde el punto de vista numérico, su objetivo principal es la obtención de una fórmula cerrada aplicando el teorema del sumatorio de Ewald [ver apéndice B].

## **5.2 Introducción al sistema de ecuaciones de Navier-Stokes**

El sistema de ecuaciones de Navier-Stokes, llamado así por Claude-Louis Navier y George Gabriel Stokes, describe el movimiento de un fluido viscoso. Estas ecuaciones se derivan de la aplicación de la segunda ley de Newton al movimiento de fluidos junto con la suposición de que la tensión en el fluido es la suma de un término viscoso proporcional al gradiente de la velocidad y un término proporcional a la presión. Las ecuaciones de Navier-Stokes son de gran interés porque describen la física de un gran número de fenómenos como: las corrientes oceánicas, el flujo de aire alrededor de un ala de avión, el movimiento de estrellas dentro de una galaxia...

La forma más común de las ecuaciones de Navier-Stokes es aquella que se aplica en el caso de fluidos newtonianos, es decir, en aquellos fluidos en los que la tensión es directamente proporcional a la velocidad del fluido. Esta ecuación viene dada por la siguiente expresión.

$$\rho \left( \frac{\partial \vec{v}(\vec{r}, t)}{\partial t} + (\vec{v}(\vec{r}, t) \cdot \nabla) \vec{v}(\vec{r}, t) \right) = -\nabla p(\vec{r}, t) + \eta \Delta \vec{v}(\vec{r}, t) \quad (5.2)$$

donde  $p(\vec{r}, t)$ , es la presión,  $\vec{v}(\vec{r}, t)$ , la velocidad del fluido,  $\rho$  y  $\eta$ , la densidad y la viscosidad respectivamente. La ecuación de Navier-Stokes dada por la Ec.(5.2), es estrictamente la ley de conservación del momento. Para describir completamente el flujo de fluido es necesario tener más información, ya sea aplicando condiciones de contorno o suponiendo conservación de la masa, conservación de la energía o definiendo una ecuación de estado para el fluido. Usualmente, se aplica la ley de conservación de la masa, a través de la conocida como "ecuación de continuidad" dada por la siguiente expresión:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{v}(\vec{r}, t)) = 0 \quad (5.3)$$

Si se supone que el fluido es incomprensible, es decir, que la densidad del fluido es constante en todo el volumen, la Ec.(5.3) se simplifica tomando la siguiente forma:

$$\nabla \cdot \vec{v}(\vec{r}, t) = 0 \quad (5.4)$$

El número de Reynolds (Ec. 5.5) es una relación adimensional utilizada en mecánica de fluidos para establecer una comparación entre los términos inerciales y los términos viscosos de la ecuación de Navier-Stokes.

$$\text{Re} = \frac{\rho v l}{\eta} \quad (5.5)$$

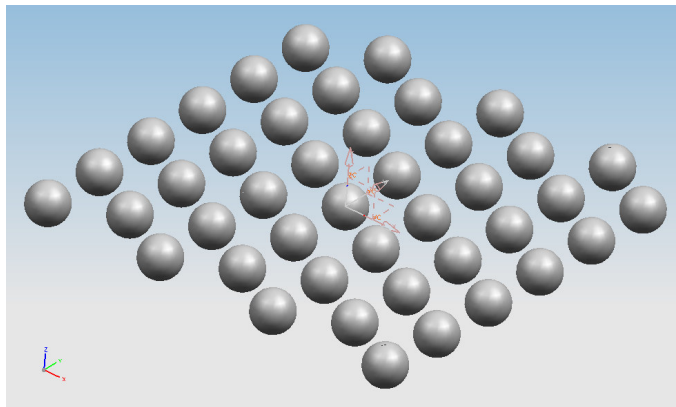
siendo  $\rho$ ,  $v$ ,  $\eta$ ,  $l$ , densidad, velocidad y viscosidad del fluido y la dimensión característica del objeto inmerso en el fluido respectivamente. Si el número de Reynolds es pequeño, quiere decir que las fuerzas viscosas dominan sobre las inerciales y podemos despreciar el término no lineal de la ecuación de Navier-Stokes:  $(\vec{v}(\vec{r}, t) \cdot \nabla) \vec{v}(\vec{r}, t)$  [Landau91]. La Ec.(5.2) se simplifica notablemente en este caso, dando lugar a la llamada ecuación de Navier-Stokes linealizada:

$$\rho \frac{\partial \vec{v}(\vec{r}, t)}{\partial t} = -\nabla p(\vec{r}, t) + \eta \Delta \vec{v}(\vec{r}, t) \quad (5.6)$$

### 5.3 Planteamiento del problema

El objetivo principal de esta aportación es el de modificar las condiciones de contorno aplicadas en el desarrollo del modelo simplificado de Arnau con el fin de incluir el efecto de la interferencia entre casquetes vecinos no considerados previamente. En primera instancia, se considerarán por separado los efectos de las partes plana y rugosa de la superficie del cristal de cuarzo. De esta forma el problema se simplifica, permitiéndonos abordar la búsqueda de una ecuación analítica explícita de la impedancia acústica. Así, en primer lugar, resolveremos el cálculo de la fuerza de arrastre que actúa sobre una esfera cualquiera de una distribución infinita y periódica de esferas situadas en el plano  $z=0$  (Fig. 5.1). Esta fuerza de arrastre considerará el efecto de interferencias de los casquetes vecinos.

Posteriormente, se aplicará el principio de superposición como ya propuso Arnau en la descripción de su modelo original [Arnau05]. Así se sumarán ponderadamente (en función del porcentaje de superficie rugosa respecto a la superficie plana) la contribución a la fuerza de arrastre total de la superficie plana que se sitúa entre los casquetes y que no se ha tenido en cuenta hasta el momento con la contribución de los casquetes rugosos. A partir de la fuerza de arrastre total, se calculará la impedancia acústica en el interfaz rugoso.



**Fig. 5.1.** Esquema de una distribución infinita de esferas cuyos centros están situados en el plano  $z=0$

### 5.3.1 Soluciones periódicas fundamentales para la ecuación de Navier-Stokes

Como ya se ha comentado previamente, para calcular la fuerza de arrastre de la parte rugosa de la superficie se aplicará el método introducido por Hasimoto [Hasimoto59].

Sea  $\vec{r}$  el vector director en el espacio,  $\vec{r} = x\vec{i} + y\vec{j} + z\vec{g}$  y  $\vec{r}_n$ , el vector que define las coordenadas de los centros de todas las esferas  $\vec{r}_n = n_1\vec{a}_1 + n_2\vec{a}_2 + \vec{a}_3$  ( $n_1, n_2 = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ ) situadas en el plano  $z=0$ , donde  $\vec{a}_1$  y  $\vec{a}_2$  son los vectores base que determinan la celda bidimensional unidad del array periódico y son paralelos a  $\vec{i}$  y  $\vec{j}$  respectivamente;  $\vec{a}_3$  es el vector base perpendicular a la celda bidimensional y es paralelo a  $\vec{g}$ .

Todas las esferas de esta distribución se consideran idénticas, rígidas y oscilan de forma síncrona con una velocidad  $\vec{u}(\vec{r}, t) = \vec{u}_0(\vec{r})e^{-j\omega t}$ , siendo  $\omega$  la pulsación y  $t$  el tiempo.

La modificación sobre la ecuación linealizada de Navier-Stokes para que admita periodicidad espacial, sería [Hasimoto59]:

$$\rho \frac{\partial \vec{v}(\vec{r}, t)}{\partial t} = -\nabla p(\vec{r}, t) + \eta \Delta \vec{v}(\vec{r}, t) - \vec{F} \sum_n \delta(\vec{r} - \vec{r}_n) \quad (5.7)$$

donde  $\vec{F}$  se corresponde con la fuerza de arrastre que ejerce el fluido sobre cada una de las esferas y  $\delta(\vec{r} - \vec{r}_n)$  es la función delta de Dirac definida por las condiciones:

$$\begin{aligned} \int_{\tau} \delta(\vec{r} - \vec{r}_n) dr &= 1 \text{ para } \tau \in \vec{r}_n \\ \int_{\tau} \delta(\vec{r} - \vec{r}_n) dr &= 0 \text{ para } \tau \notin \vec{r}_n \\ \delta(\vec{r} - \vec{r}_n) &= 0 \text{ para } \vec{r} \neq \vec{r}_n \end{aligned} \quad (5.8)$$

Así, Hasimoto describe el efecto de todas las esferas sobre la esfera centrada en el origen. Debido a la periodicidad de la estructura, es posible reducir el problema considerando en los cálculos únicamente la celda básica que contiene la esfera centrada en el origen, determinada por los vectores base  $\vec{a}_1$  y  $\vec{a}_2$ .

Si bien el problema del flujo atravesando una distribución periódica de esferas ha sido tratado previamente en numerosas ocasiones, estos análisis se han limitado normalmente a flujos de Stokes [Hasimoto59]; esto es, a la simplificación de la ecuación de Navier-Stokes linealizada (Ec. 5.6),

considerando que el flujo es estacionario. Así, si suponemos que el estado del flujo no varía con el tiempo, la Ec.(5.6) quedaría de la forma [Landau91]:

$$\eta\Delta\vec{v}(\vec{r},t) = \nabla p(\vec{r},t) \quad (5.9)$$

El caso que nos ocupa es mucho más complejo, puesto que el fluido tiene una variación temporal. Las publicaciones que afrontan este problema son mucho menos numerosas y han sido enfocadas principalmente desde el punto de vista de una resolución numérica [Graham02-1, Graham02-2, Cerutti86, Tabakova82-1, Tabakova82-2, Schram06]. En estos momentos el autor no tiene constancia de ningún trabajo que incluya una modificación de las ecuaciones de Hasimoto con el propósito de obtener una solución analítica incluyendo los efectos inerciales del término  $\partial\vec{v}(\vec{r},t)/\partial t$  como el que se plantea en la presente tesis.

Partiendo de la ecuación de Navier-Stokes descrita (Ec. 5.7) y de la conocida ecuación de continuidad para fluidos incompresibles (Ec. 5.4), se pretende obtener una expresión para la fuerza de arrastre que soporta una esfera cualquiera de la distribución periódica. Basándonos en la linealidad de la Ec. (5.7) y debido a que la velocidad de las esferas varía sinusoidalmente con el tiempo de acuerdo a  $\vec{u}(\vec{r},t) = \vec{u}_0(\vec{r})e^{-j\omega t}$ , podemos asumir que la velocidad y la presión en el fluido  $\vec{v}(\vec{r},t)$  y  $p(\vec{r},t)$  variarán de igual forma. Por lo tanto, a partir de ahora, prescindiremos de la variación temporal en nuestra resolución, sustituyendo además, la derivada parcial de la velocidad con respecto al tiempo por  $j\omega\rho\vec{v}(\vec{r})$ . Así, trabajaremos sobre el sistema de ecuaciones siguiente:

$$j\omega\rho\vec{v}(\vec{r}) = -\nabla p(\vec{r}) + \eta\Delta\vec{v}(\vec{r}) - \vec{F}\sum_n \delta(\vec{r} - \vec{r}_n) \quad (5.10)$$

$$\nabla \cdot \vec{v}(\vec{r}) = 0 \quad (5.11)$$

Una vez eliminada la dependencia temporal en el sistema de ecuaciones, en el siguiente paso de nuestro razonamiento, trataremos la periodicidad espacial del array de esferas. Apoyándonos en esta distribución periódica, podemos deducir que las expresiones de la presión y de la velocidad en el fluido también serán periódicas y por lo tanto, se pueden escribir en forma de series de Fourier.

En la idea original de Hasimoto los cálculos se realizaban con una distribución isotrópica e infinita de esferas que resultaba, por lo tanto, en una periodicidad tridimensional de la presión y la velocidad. En nuestro

problema en cambio, la periodicidad de la estructura es bidimensional, puesto que las esferas se distribuyen uniformemente pero solamente en el plano  $z=0$ . Este caso ya ha sido analizado para un flujo de Stokes [Ishii79]. Ishii sustituye las típicas series de Fourier en tres dimensiones de Hasimoto por series de Fourier en las direcciones  $x$  e  $y$ , y una integral de Fourier en la dirección donde no existe periodicidad, en este caso la  $z$ . Así, proponemos una forma para la velocidad y el gradiente de presiones como sigue:

$$\vec{v}(\vec{r}) = \vec{U}_0 - \int_{-\infty}^{\infty} dl \sum_{k_1, k_2} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} \quad (5.12)$$

$$-\nabla p(\vec{r}) = \int_{-\infty}^{\infty} dl \sum_{k_1, k_2} \vec{P}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} \quad (5.13)$$

donde  $\vec{V}_k$  y  $\vec{P}_k$ , son los coeficientes de la serie de Fourier de la velocidad y el gradiente de presiones,  $\vec{U}_0$  es el flujo medio que atraviesa el array y que nos permite cumplir las condiciones de contorno y  $\vec{k}$  es el vector de red recíproca dado por la siguiente expresión:

$$\vec{k} = k_1\vec{q}_1 + k_2\vec{q}_2 + l\vec{e}_z = \vec{k}_0 + l\vec{e}_z \quad (k_1, k_2 = 0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (5.14)$$

La red recíproca, o red transformada, es un concepto muy utilizado en sistemas con simetría traslacional como: estructuras cristalinas, arrays de antenas, etc. Consideraremos la expresión dada por la Ec.(5.15) como el vector de posición que define el centro de todas las esferas de la distribución periódica que estamos analizando. En nuestro caso no se puede utilizar una red recíproca convencional. Mientras que estamos trabajando en un dominio tridimensional, la periodicidad espacial es solamente bidimensional. Por ello, en la Ec.(5.15), sólo los vectores  $\vec{a}_1$  y  $\vec{a}_2$  se multiplican por  $n_1$  y  $n_2$ .

$$\vec{r}_n = n_1\vec{a}_1 + n_2\vec{a}_2 + \vec{a}_3 \quad (n_1, n_2 = 0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (5.15)$$

Definiremos el módulo del vector perpendicular al plano donde se hallan los centros de las esferas según la Ec.(5.16).

$$L = |\vec{a}_3| \quad (5.16)$$

Asimismo, el área de la celda bidimensional periódica vendrá definida por la siguiente expresión:



$$\tau = |\vec{a}_1 \times \vec{a}_2| \quad (5.17)$$

y el volumen de la celda tridimensional que contiene a una esfera por:

$$\theta = \tau L \quad (5.18)$$

A partir de las Ec.(5.16) y (5.17) se puede construir la llamada red recíproca de  $\vec{r}_n$ . Así, los vectores base de esta red recíproca tendrán las formas dadas por las siguientes expresiones [Nitsche89].

$$\vec{q}_1 = \frac{1}{\tau} \vec{a}_2 \times \vec{u}_3 \quad (5.19)$$

$$\vec{q}_2 = \frac{1}{\tau} \vec{u}_3 \times \vec{a}_1 \quad (5.20)$$

$$\vec{e}_z = \frac{1}{L} \vec{u}_3 \quad (5.21)$$

donde  $\vec{u}_3$  es el vector unitario en la dirección de  $\vec{a}_3$ .

Sustituyendo las Ec.(5.12) y (5.13) en (5.10) y (5.11) se llega a:

$$j\omega\rho \int_{-\infty}^{\infty} dl \sum_{k_1, k_2} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} = \int_{-\infty}^{\infty} dl \sum_{k_1, k_2} \vec{P}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} + \eta\Delta \left( \int_{-\infty}^{\infty} dl \sum_{k_1, k_2} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} \right) - \vec{F} \sum_n \delta(\vec{r} - \vec{r}_n) \quad (5.22)$$

$$\nabla \cdot \left( \int_{-\infty}^{\infty} dl \sum_{k_1, k_2} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} \right) = 0 \quad (5.23)$$

La intención a partir de ahora será calcular los coeficientes  $\vec{V}_k$  y  $\vec{P}_k$ , que permitirán obtener una expresión para la velocidad y la presión en el medio fluido. Puesto que los términos de una serie de Fourier son ortogonales, y por tanto linealmente independientes, podemos eliminar los sumatorios de  $k$  y trabajar simplemente con los coeficientes  $\vec{V}_k$  y  $\vec{P}_k$  [Hasimoto59]:

$$j\omega\rho \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{P}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl + \eta\Delta \left( \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl \right) - \vec{F} \sum_n \delta(\vec{r} - \vec{r}_n) \quad (5.24)$$

$$\nabla \cdot \left( \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl \right) = 0 \quad (5.25)$$

El primer paso que realizaremos para tratar de simplificar el sistema de integral anterior es multiplicar las Ecs.(5.24) y (5.25) por  $e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}}$ .

$$e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} j\omega\rho\vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl = e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{P}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl + e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \eta\Delta \left( \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl \right) - e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \vec{F} \sum_n \delta(\vec{r} - \vec{r}_n) \quad (5.26)$$

$$e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \nabla \cdot \left( \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl \right) = 0 \quad (5.27)$$

A continuación se integran sobre  $z$  (la variable perpendicular al array planar de esferas) las Ecs.(5.26) y (5.27); el resultado se muestra en las ecuaciones (5.28) y (5.29). Un procedimiento semejante a éste es el que usa Hasimoto para simplificar las ecuaciones (5.22) y (5.23). Se intenta eliminar los términos  $e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}}$  con la intención de obtener una expresión compacta para  $\vec{V}_k$  y  $\vec{P}_k$ .

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} j\omega\rho\vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl dz &= \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{P}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl dz + \\ &+ \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \eta\Delta \left( \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl \right) dz - \int_{-\infty}^{\infty} \vec{F} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \sum_n \delta(\vec{r} - \vec{r}_n) dz \end{aligned} \quad (5.28)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \nabla \cdot \left( \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl \right) dz = 0 \quad (5.29)$$

A partir de ahora se trabajará en la reducción de la ecuación (5.28). Con el fin de simplificar la lectura del documento, procedemos a operar separadamente con cada uno de los términos de la ecuación, denominándolos  $I_1$ ,  $I_2$ ,  $I_3$  e  $I_4$ . Así, la Ec.(5.28) queda:

$$I_1 = I_2 + I_3 + I_4 \quad (5.30)$$

Antes de comenzar la reducción definimos  $\vec{r}^0$  (Ec. 5.31) como el vector de las componentes paralelas al plano del array de esferas del vector director:

$$\vec{r}^0 = x\vec{i} + y\vec{j} \quad (5.31)$$

Siguiendo con la reducción, el término de la izquierda de la igualdad,  $I_1$  tiene la forma:

$$I_1 = \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} j\omega\rho\vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dldz \quad (5.32)$$

Sacando las constantes fuera de la integral obtenemos la Ec.(5.33):

$$I_1 = j\omega\rho \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dldz \quad (5.33)$$

Aplicando las definiciones dadas en (5.14) y (5.31) se obtiene la Ec.(5.34), donde se han separado las componentes paralelas al plano donde se sitúan las esferas del vector de onda y del vector de posición.

$$I_1 = j\omega\rho \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}^0\vec{r}^0} e^{-j2\pi lz} dldz \quad (5.34)$$

Aprovechando la separación de coordenadas realizada en (5.34), se extrae de la integral interior la función exponencial carente de la variable a integrar  $l$ .

$$I_1 = j\omega\rho \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} e^{-j2\pi\vec{k}^0\vec{r}^0} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi lz} dldz \quad (5.35)$$

Operando con las exponenciales en la integral exterior se obtiene la siguiente ecuación:

$$I_1 = j\omega\rho \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi lz} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi lz} dldz \quad (5.36)$$

Finalmente, aplicando las propiedades de la transformada y la transformada inversa de Fourier se obtiene:

$$I_1 = j\omega\rho\vec{V}_k \quad (5.37)$$

Pasamos a desarrollar el primer término de la derecha de la igualdad  $I_2$ , definido por:

$$I_2 = \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{P}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dldz \quad (5.38)$$

Separamos las componentes paralelas al plano de esferas de los vectores  $\vec{r}$  y  $\vec{k}$  aplicando las definiciones dadas por (5.14) y (5.31) obteniendo:

$$I_2 = \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{P}_k e^{-j2\pi\vec{k}^0\vec{r}^0} e^{-j2\pi lz} dldz \quad (5.39)$$

Se extrae de la integral interior la exponencial que no depende de la variable de integración  $l$ .

$$I_2 = \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} e^{-j2\pi\vec{k}^0\vec{r}^0} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{P}_k e^{-j2\pi lz} dldz \quad (5.40)$$

Operando con las exponenciales de la integral exterior sobre la ecuación anterior se obtiene:

$$I_2 = \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi lz} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{P}_k e^{-j2\pi lz} dldz \quad (5.41)$$

Aplicando las propiedades de la transformada y transformada inversa de Fourier sobre la Ec.(5.41) resulta:

$$I_2 = \vec{P}_k \quad (5.42)$$

El segundo término de la derecha de la igualdad,  $I_3$ , se define en la siguiente ecuación:

$$I_3 = \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \eta \Delta \left( \int_{-\infty}^{\infty} \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dl \right) dz \quad (5.43)$$

Sacando las constantes fuera de la integral interior e introduciendo el laplaciano resulta:

$$I_3 = \eta \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} \Delta \left( \vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} \right) dldz \quad (5.44)$$

Resolviendo el laplaciano se obtiene:

$$I_3 = \eta \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} \left( -\vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} 4\pi^2 k^2 \right) dldz \quad (5.45)$$

Extrayendo las constantes fuera de las integrales y empleando las definiciones dadas en (5.14) y (5.31) para separar las componentes paralelas al plano de esferas de los vectores  $\vec{r}$  y  $\vec{k}$  se obtiene:

$$I_3 = -4\pi^2 k^2 \eta \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\bar{k}\bar{r}} \int_{-\infty}^{\infty} \bar{V}_k e^{-j2\pi\bar{k}^0\bar{r}^0} e^{-j2\pi l z} dldz \quad (5.46)$$

Extrayendo de la primera integral la exponencial que no depende de  $z$  y operando como en los casos anteriores se obtiene la siguiente ecuación:

$$I_3 = -4\pi^2 k^2 \eta \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi l z} \int_{-\infty}^{\infty} \bar{V}_k e^{-j2\pi l z} dldz \quad (5.47)$$

Finalmente, aplicando las propiedades de la transformada y la transformada inversa de Fourier sobre la ecuación (5.47) se obtiene:

$$I_3 = -4\pi^2 k^2 \eta \bar{V}_k \quad (5.48)$$

El último término de la Ec.(5.30) tiene la forma:

$$I_4 = \int_{-\infty}^{\infty} \bar{F} e^{j2\pi\bar{k}\bar{r}} \sum_n \delta(\bar{r} - \bar{r}_n) dz \quad (5.49)$$

Extrayendo las constantes fuera de la integral se obtiene:

$$I_4 = \bar{F} \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\bar{k}\bar{r}} \sum_n \delta(\bar{r} - \bar{r}_n) dz \quad (5.50)$$

Para resolver la Ec.(5.50) haremos uso de la fórmula del sumatorio de Poisson dado por la siguiente expresión:

$$\sum_n \delta(\bar{r} - \bar{r}_n) = \frac{1}{\tau} \sum_k e^{-j2\pi\bar{k}\bar{r}} \quad (5.51)$$

Esta fórmula relaciona una suma infinita en el dominio espacial con una suma equivalente en el dominio transformado de Fourier y puede ser aplicada para resolver la integral dada en la Ec.(5.50) [Pozrikidis96]. Transformaremos primero la función delta de Dirac de la ecuación (5.50) de forma adecuada según se indica en la siguiente expresión:

$$I_4 = \bar{F} \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\bar{k}\bar{r}} \sum_n \delta(\bar{r}^0 - \bar{r}_n^0) \delta(z - |\bar{a}_3|) dz \quad (5.52)$$

Y definiremos  $\bar{r}_n^0$  como:

$$\bar{r}_n^0 = n_1 \bar{a}_1 + n_2 \bar{a}_2 \quad (n_1, n_2 = 0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (5.53)$$

El cambio realizado en (5.52) tiene como objeto separar las coordenadas con periodicidad espacial en el tren de deltas para poder aplicar la fórmula (5.51). Así sustituiremos el sumatorio en  $n$  por su equivalente en  $k$  según la siguiente ecuación:

$$I_4 = \vec{F} \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \frac{1}{\tau} \sum_k e^{-j2\pi\vec{k}^0\vec{r}^0} \delta(z - |\vec{a}_3|) dz \quad (5.54)$$

Se prescinde ahora del sumatorio en  $k$  puesto que los términos de una serie de Fourier son ortogonales cómo se explicó anteriormente. Luego, resulta la siguiente ecuación:

$$I_4 = \frac{\vec{F}}{\tau} \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} e^{-j2\pi\vec{k}^0\vec{r}^0} \delta(z - |\vec{a}_3|) dz \quad (5.55)$$

A continuación, se extraen las constantes fuera de la integral y se opera con las exponenciales, obteniendo

$$I_4 = \frac{\vec{F}}{\tau} \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi lz} \delta(z - |\vec{a}_3|) dz \quad (5.56)$$

Finalmente, se aplican las propiedades de desplazamiento de la función delta de Dirac para resolver la integral de la Ec.(5.56), obteniendo:

$$I_4 = \frac{\vec{F}}{\tau} e^{j2\pi\vec{k}\vec{a}_3} \quad (5.57)$$

Seguidamente, desarrollaremos la ecuación de continuidad transformada definida por la Ec.(5.29). Extrayendo las constantes fuera de las integrales e introduciendo el gradiente en la integral interior se obtiene:

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} \nabla \cdot (\vec{V}_k e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}}) dldz = 0 \quad (5.58)$$

Resolviendo el gradiente:

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\vec{k}\vec{r}} \int_{-\infty}^{\infty} (V_k^x k_1 + V_k^y k_2 + V_k^z l) 2\pi e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}} dldz = 0 \quad (5.59)$$

Aplicando (5.14) y (5.31) y extrayendo las constantes fuera de la integral resulta:

$$2\pi \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi\bar{k}\bar{r}} \int_{-\infty}^{\infty} (V_k^x k_1 + V_k^y k_2 + V_k^z l) e^{-j2\pi\bar{k}^0\bar{r}^0} e^{-j2\pi lz} dldz = 0 \quad (5.60)$$

Extrayendo la exponencial constante de la primera integral y operando se obtiene:

$$2\pi \int_{-\infty}^{\infty} e^{j2\pi lz} \int_{-\infty}^{\infty} (V_k^x k_1 + V_k^y k_2 + V_k^z l) e^{-j2\pi lz} dldz = 0 \quad (5.61)$$

Aplicando las propiedades de la transformada y la transformada inversa de Fourier:

$$2\pi (V_k^x k_1 + V_k^y k_2 + V_k^z l) = 0 \quad (5.62)$$

Simplificando:

$$V_k^x k_1 + V_k^y k_2 + V_k^z l = 0 \quad (5.63)$$

Finalmente, reescribiendo la Ec.(5.63) en forma de producto escalar resulta:

$$\vec{V}_k \cdot \vec{k} = 0 \quad (5.64)$$

Después de todo el proceso de reducción, es posible escribir el sistema de ecuaciones dado por (5.28) y (5.29) de la forma:

$$j\omega\rho\vec{V}_k = \vec{P}_k - 4\pi^2 k^2 \eta \vec{V}_k - \frac{\vec{F}}{\tau} e^{j2\pi\bar{k}\bar{a}_3} \quad (5.65)$$

$$\vec{V}_k \cdot \vec{k} = 0 \quad (5.66)$$

A continuación, se tratará de obtener una ecuación cerrada para  $\vec{V}_k$ , que posibilitará el cálculo de la distribución de velocidades en el flujo posteriormente. El primer paso es obtener la expresión de  $\vec{P}_k$ . Es posible despejarla de (5.65), resultando:

$$\vec{P}_k = (j\omega\rho + 4\pi^2 k^2 \eta) \vec{V}_k + \frac{\vec{F}}{\tau} e^{j2\pi\bar{k}\bar{a}_3} \quad (5.67)$$

Ahora trataremos de reducir la expresión (5.67); haciendo el producto escalar con el vector de red recíproca resulta:

$$\vec{P}_k \cdot \vec{k} = (j\omega\rho + 4\pi^2 k^2 \eta) \vec{V}_k \cdot \vec{k} + \frac{\vec{F}}{\tau} e^{j2\pi\vec{k}\vec{a}_3} \cdot \vec{k} \quad (5.68)$$

Si se usa la condición de que los coeficientes de la serie de Fourier de la velocidad y el vector de red recíproca son perpendiculares descrita en (5.66), la ecuación (5.68) queda:

$$\vec{P}_k \cdot \vec{k} = \frac{\vec{F}}{\tau} e^{j2\pi\vec{k}\vec{a}_3} \cdot \vec{k} \quad (5.69)$$

Finalmente, despejando los coeficientes de la serie de Fourier de la presión de (5.69), se obtiene:

$$\vec{P}_k = \frac{(\vec{k} \cdot \vec{F} e^{j2\pi\vec{k}\vec{a}_3})}{k^2 \tau} \cdot \vec{k} \quad (5.70)$$

Si sustituimos (5.70) en la ecuación (5.65) se puede obtener la expresión de los coeficientes de la serie de Fourier de la velocidad del fluido dada por:

$$\vec{V}_k = \frac{1}{j\omega\rho + 4\pi^2 k^2 \eta} \left[ \frac{(\vec{k} \cdot \vec{F} e^{j2\pi\vec{k}\vec{a}_3}) \vec{k}}{k^2 \tau} - \frac{\vec{F}}{\tau} e^{j2\pi\vec{k}\vec{a}_3} \right] \quad (5.71)$$

A partir de los coeficientes de la serie de Fourier de la velocidad y la expresión (5.12) se obtiene:

$$v_i = U_i - \int_{-\infty}^{\infty} dl \sum_{k_1, k_2} \left( \frac{1}{j\omega\rho + 4\pi^2 k^2 \eta} \left[ \frac{(\vec{k} \cdot \vec{F}) \vec{k}}{k^2 \tau} - \frac{\vec{F}}{\tau} \right] \right) e^{-j2\pi\vec{k}(\vec{r} - \vec{a}_3)} \quad (5.72)$$

Se hace notar que la ecuación anterior representa cada una de las tres componentes de la velocidad. Siguiendo con la nomenclatura que introdujo Hasimoto [Hasimoto59] (ver apéndice B), es posible escribir la ecuación (5.72) de la forma:

$$v_i = U_i - \frac{1}{4\pi\eta} \left( F_j S_1 - \sum_{l=1}^3 F_l \frac{\partial S_2}{\partial x_l \partial x_j} \right) \quad (5.73)$$

donde:



$$S_1 = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\tau\pi} \sum_{k_1, k_2 \neq 0} \frac{e^{-j2\pi\vec{k}(\vec{r}-\vec{a}_3)}}{k^2 + j\frac{1}{2\pi^2\delta^2}} dl \quad (5.74)$$

$$S_2 = -\int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{4\tau\pi^3} \sum_{k_1, k_2 \neq 0} \frac{e^{-j2\pi\vec{k}(\vec{r}-\vec{a}_3)}}{k^4 + j\frac{k^2}{2\pi^2\delta^2}} dl \quad (5.75)$$

Siendo  $\delta=(2\eta/\omega)^{1/2}$ , la llamada profundidad de penetración en el medio [Landau91]. La forma de la ecuación (5.73) para  $v_i$  se emplea para poder utilizar la técnica de Ewald [Ewald21] en la obtención de una expresión cerrada para la velocidad. Esta técnica se encuentra completamente descrita en el apéndice B de este trabajo según la aplicó Hasimoto al problema de un flujo estacionario que atraviesa un array tridimensional e infinito de esferas.

### 5.3.2 Aplicación de la técnica de Ewald en la búsqueda de una expresión analítica cerrada para el campo de velocidades

Una vez hallada la ecuación que determina el campo de velocidades en la agrupación de esferas plana, se trata de simplificarla al máximo con el fin de obtener una expresión analítica manejable. El problema reside en que la solución obtenida está definida por una serie de Fourier. Estas series tienen una convergencia muy lenta, y es necesario incluir muchos términos para asegurar la precisión de la solución.

En este epígrafe se aplicará una técnica, planteada originalmente por Hasimoto en su trabajo ‘On the Periodic Fundamental Solutions fo the Stokes equation and Their Application to Viscous flow Past a cubil Array of Spheres’ [Hashimoto59] para este campo de aplicación, consistente en sustituir la serie de Fourier por dos sumatorios complementarios equivalentes que converjan rápidamente. El primero de éstos se realizará sobre la red periódica física, mientras que el segundo se hará sobre el dominio recíproco transformado. De esta manera, y tras aplicar métodos perturbativos y asintóticos, se puede llegar a una solución analítica aproximada (ver apéndice B).

La equivalencia original en la que se basa Hasimoto para resolver el problema del flujo estacionario atravesando una agrupación tridimensional infinita de esferas es la representación integral de  $1/k^{2m}$  descrita a continuación.

$$\sigma_m = \frac{1}{k^{2m}} = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \int_0^\infty e^{-\pi k^2 \beta} \beta^{m-1} d\beta \quad (5.76)$$

Las expresiones obtenidas por Hasimoto para  $S_1$  y  $S_2$  son función de  $1/k^{2m}$ , y por tanto puede hallarse una equivalencia más o menos sencilla entre  $S_1$  y  $S_2$  y  $\sigma_m$  tomando  $m$  los valores 1 ó 2. En cambio, las que se obtienen en el desarrollo de este trabajo son mucho más complejas. A partir de la generalización de las ecuaciones (5.74) y (5.75), se define la Ec.(5.77):

$$\sigma_m = \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{k \neq 0} \frac{e^{-j2\pi k(\bar{r}-\bar{a}_3)}}{\left(k^2 + j\frac{1}{2\pi^2 \delta^2}\right)^m} dl \quad (5.77)$$

Aplicando la representación integral de  $1/k^{2m}$  descrita en (5.76) a la expresión derivada en la resolución de nuestro problema, se obtiene la ecuación (5.78). Una vez calculada la expresión de  $\sigma_m$ , es inmediato obtener las expresiones de  $S_1$  y  $S_2$  a partir de (5.77).

$$\sigma_m = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \sum_{k \neq 0} \int_0^\infty e^{-\pi\left(k^2 + j\frac{1}{2\pi^2 \delta^2}\right)\beta - j2\pi k(\bar{r}-\bar{a}_3)} \beta^{m-1} d\beta dl \quad (5.78)$$

Introduciendo el sumatorio en  $k$  dentro de la integral cuya variable de integración es  $\beta$  y restando uno al sumatorio para poder incluir el caso de  $k=0$  (ver apéndice B), resulta la siguiente ecuación:

$$\sigma_m = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \int_0^\infty \beta^{m-1} \left[ \sum_k e^{-\pi\left(k^2 + j\frac{1}{2\pi^2 \delta^2}\right)\beta - j2\pi k(\bar{r}-\bar{a}_3)} - 1 \right] d\beta dl \quad (5.79)$$

A continuación, se dividen los límites de integración, descomponiendo la integral original de (5.79) en dos partes, una que va de 0 a  $\alpha$ , y la otra de  $\alpha$  a  $\infty$ , siendo  $\alpha$  una constante arbitraria escogida para facilitar los cálculos (ver apéndice B). Nótese que en la segunda integral, la que va de  $\alpha$  a  $\infty$ , no se incluye el caso  $k=0$  en el sumatorio en  $k$ , con el fin de facilitar el cálculo en transformaciones sucesivas (ver apéndice B).

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\alpha} \beta^{m-1} \left[ \sum_k e^{-\pi \left( k^2 + j \frac{1}{2\pi^2 \delta^2} \right) \beta - j 2\pi \bar{k} (\bar{r} - \bar{a}_3)} - 1 \right] d\beta dl + \int_{-\infty}^{\infty} \int_{\alpha}^{\infty} \beta^{m-1} \sum_{k \neq 0} e^{-\pi \left( k^2 + j \frac{1}{2\pi^2 \delta^2} \right) \beta - j 2\pi \bar{k} (\bar{r} - \bar{a}_3)} d\beta dl \right] \quad (5.80)$$

La primera integral de (5.80), cuyos límites de integración van de 0 a  $\alpha$ , da lugar a dos integrales al convertir la integral de una suma en una suma de integrales. Asimismo, se transforma la tercera integral doble, extrayendo los términos no dependientes de  $\beta$ , resultando:

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\alpha} \beta^{m-1} \sum_k e^{-\pi \left( k^2 + j \frac{1}{2\pi^2 \delta^2} \right) \beta - j 2\pi \bar{k} (\bar{r} - \bar{a}_3)} d\beta dl - \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\alpha} \beta^{m-1} d\beta dl + \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{k \neq 0} e^{-j 2\pi \bar{k} (\bar{r} - \bar{a}_3)} \int_{\alpha}^{\infty} \beta^{m-1} e^{-\pi \left( k^2 + j \frac{1}{2\pi^2 \delta^2} \right) \beta} d\beta dl \right] \quad (5.81)$$

En este paso, se aplica la transformada theta de Ewald basada en la fórmula del sumatorio de Poisson (ver Apéndice B) a la primera integral de la ecuación (5.81). En esta transformación, se sustituye el sumatorio en  $k$  por un sumatorio en  $n$ . Asimismo, se resuelve parte de la segunda integral de (5.81), que resulta inmediata. El resultado de estas transformaciones se refleja en la Ec.(5.82):

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\alpha} \beta^{m-1} e^{-j \frac{\pi}{2\pi^2 \delta^2} \beta} \left[ \frac{\tau}{\beta} \sum_n e^{-\pi \left( (\bar{r} - \bar{a}_3) - \bar{r}_n \right)^2 / \beta} \right] d\beta dl - \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\alpha^m}{m} dl + \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{k \neq 0} e^{-j 2\pi \bar{k} (\bar{r} - \bar{a}_3)} \int_{\alpha}^{\infty} \beta^{m-1} e^{-\pi \left( k^2 + j \frac{1}{2\pi^2 \delta^2} \right) \beta} d\beta dl \right] \quad (5.82)$$

Con el fin de simplificar la lectura del documento, se plantea la resolución de la integral (5.81) separadamente, tal y como se indica en (5.82). Se hace notar, que se usa la notación  $\sigma_m^1$ ,  $\sigma_m^2$  para referenciar la primera y la tercera integral de (5.82) respectivamente.

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \left[ \sigma_m^1 - \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\alpha^m}{m} dl + \sigma_m^2 \right] \quad (5.83)$$

En primer lugar, se afronta la resolución de  $\sigma_m^1$  definida como sigue:

$$\sigma_m^1 = \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\alpha} \beta^{m-1} e^{-j\pi \frac{1}{2\pi^2 \delta^2} \beta} \left[ \frac{\tau}{\beta} \sum_n e^{-\pi((\bar{r}-\bar{a}_3)-\bar{r}_n)^2/\beta} \right] d\beta dl \quad (5.84)$$

Extrayendo constantes y agrupando términos en  $\beta$ , se obtiene la expresión dada en (5.85). En el procedimiento original de Ewald que aplica Hasimoto en su trabajo, la ecuación resultante en este paso se puede transformar de manera que la ecuación (5.85) se reescribe como la función gamma incompleta (ver apéndice B). Esta función está tabulada y es relativamente sencillo obtener series convergentes de pocos términos. Sin embargo en nuestro caso, no ha sido posible llevar a cabo esta transformación. En otras aplicaciones del desarrollo original de Hasimoto encontradas en la bibliografía [Cheng97], se llega a conclusiones similares y se opta por la resolución numérica de las expresiones obtenidas.

$$\sigma_m^1 = \tau \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\alpha} \beta^{m-2} e^{-j\pi \frac{1}{2\pi^2 \delta^2} \beta} \sum_n e^{-\pi((\bar{r}-\bar{a}_3)-\bar{r}_n)^2/\beta} d\beta dl \quad (5.85)$$

Dejando por el momento la resolución de la ecuación (5.85), nos disponemos a trabajar con la tercera integral de la expresión (5.82). Realizando el cambio de variables  $\beta = \alpha \xi$ , se obtiene la expresión dada por la ecuación (5.86). Nótese que los límites de integración que antes variaban de  $\alpha$  a  $\infty$ , ahora varían de 1 a  $\infty$ .

$$\sigma_m^2 = \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k(\bar{r}-\bar{a}_3)} \int_1^{\infty} (\alpha \xi)^{m-1} e^{-\pi \left( k^2 + j \frac{1}{2\pi^2 \delta^2} \right) (\alpha \xi)} \alpha d\xi dl \quad (5.86)$$

Agrupando los términos de la ecuación (5.86), se obtiene la siguiente expresión:

$$\sigma_m^2 = \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k(\bar{r}-\bar{a}_3)} \int_1^{\infty} \alpha^m \xi^{m-1} e^{-\pi \alpha \left( k^2 + j \frac{1}{2\pi^2 \delta^2} \right) \xi} d\xi dl \quad (5.87)$$

Extrayendo las constantes de la ecuación (5.87) resulta:

$$\sigma_m^2 = \alpha^m \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k(\bar{r}-\bar{a}_3)} \int_1^{\infty} \xi^{m-1} e^{-\pi \alpha \left( k^2 + j \frac{1}{2\pi^2 \delta^2} \right) \xi} d\xi dl \quad (5.88)$$

En este caso, si que se puede reescribir la ecuación (5.88) mediante la función gamma de Euler, ya que la integral de  $\xi$  coincide con su definición. Así la ecuación (5.88) queda:

$$\sigma_m^2 = \alpha^m \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k(\bar{r}-\bar{a}_3)} \phi_{m-1}(\pi\alpha k^2 + j\frac{\pi\alpha}{2\pi^2\delta^2}) dl \quad (5.89)$$

Donde  $\phi_v(x) = \int_1^{\infty} \xi^v e^{-x\xi} d\xi$  es la función gamma de Euler de orden  $v$  y de argumento  $x$ .

Como se ha comentado anteriormente, la función gamma de Euler está tabulada para distintos valores de  $v$ . Para cada uno de estos valores se conocen aproximaciones asintóticas cuando  $x$  tiende a 0 que simplifican notablemente el manejo y cálculo con esta función (ver apéndice B). En el caso de que  $x$  tienda a  $\infty$ , la función gamma de Euler tiende rápidamente a 0.

Finalmente, se puede reescribir la ecuación (5.82), mediante los resultados obtenidos en (5.85) y (5.89), para llegar a una expresión final que nos permite calcular  $S_1$  y  $S_2$ .

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \left[ \begin{aligned} & \tau \int_{-\infty}^{\alpha} \beta^{m-2} e^{-j\pi\frac{1}{2\pi^2\delta^2}\beta} \sum_n e^{-\pi(\bar{r}-\bar{a}_3)\bar{r}_n^2/\beta} d\beta dl - \\ & - \int_{-\infty}^{\alpha} \frac{\alpha^m}{m} dl + \alpha^m \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k(\bar{r}-\bar{a}_3)} \phi_{m-1}(\pi\alpha k^2 + j\frac{\pi\alpha}{2\pi^2\delta^2}) dl \end{aligned} \right] \quad (5.90)$$

Se hace notar que la expresión (5.90) es mucho más compleja que la hallada por Hasimoto en el caso de flujo estacionario. La imposibilidad de reescribir la primera integral de (5.90) en forma de función Gamma de Euler, junto con la presencia de integrales con límites infinitos debidas a la transformada de Fourier en la dirección perpendicular al plano de las esferas, limita en gran medida las posibilidades de obtener una expresión simple y con sentido físico para la impedancia acústica del interfaz rugoso.

### 5.3.3 Cálculo de la fuerza de arrastre en la distribución de esferas

Una vez hallada la expresión que permite obtener  $S_1$  y  $S_2$ , es posible calcular directamente el campo de velocidades a partir de la fuerza de arrastre y la expresión (5.73). En el problema que se aborda en este trabajo de investigación, la fuerza de arrastre es, precisamente, la magnitud que se trata de calcular. Se hace por lo tanto necesario aplicar una condición de contorno al campo de velocidades conocido para poder despejar el valor de esta fuerza de arrastre.

En el problema abordado por Hasimoto, se emplea la ecuación (5.91), con  $\vec{u}_0 = 0$  como condición de contorno en el cálculo la fuerza de arrastre.

$$\langle \vec{v} \rangle = \frac{1}{4\pi a^2} \int_{r=a} \vec{v} dS = \vec{u}_0 \quad (5.91)$$

Esta expresión fue propuesta por Burgers [Burgers41] como una buena aproximación, considerando el valor medio del campo de velocidades en la superficie de la esfera una magnitud relativamente accesible. En nuestro caso, la velocidad en la superficie de la esfera varía con el tiempo, por lo que el uso de la media no es una buena aproximación. Este hecho complica aún más la obtención de un modelo analítico para la impedancia acústica de un cristal de cuarzo rugoso.

## 5.4 Conclusiones

En vista de los resultados obtenidos en los epígrafes anteriores no resulta factible derivar un modelo analítico que proporcione una interpretación física simple con la inclusión de condiciones de contorno armónicas a partir de este planteamiento. Sería posible usar las expresiones halladas en esta aportación para implementar un modelo numérico para el cálculo computacional de impedancias. Este resultado queda lejos de nuestro objetivo inicial.

Las aproximaciones realizadas en el desarrollo con el fin de obtener una expresión analítica pueden llevar a una falta de precisión de la implementación numérica del modelo en relación con otros métodos computacionales. Estas aproximaciones son: la suposición de que el efecto de interferencia entre casquetes no afecta a la contribución a la impedancia acústica de la superficie plana, la no consideración del término no lineal en la ecuación de Navier-Stokes y el truncamiento de las series necesario para obtener una solución en la expresión del campo de velocidades.

Ciertos métodos numéricos como el de los elementos finitos y el de los volúmenes finitos se han aplicado con éxito en el modelado de interfaces sólido-líquido [Zienkiewicz67-1, Ansys11, Versteeg95]. La exactitud de éstos métodos ha sido estudiada ampliamente y el error cometido en la discretización puede ser determinado [Oden91].

El desarrollo matemático realizado será de mucha utilidad en aportaciones posteriores de este trabajo de investigación, donde se propondrá una corrección semi-empírica para la inclusión de condiciones de contorno armónicas en el modelo de Arnau para la impedancia acústica de un cristal resonador de cuarzo rugoso en medio líquido.

## **6. Aportación. Parte 4: Modelado por medio del Método de los Elementos Finitos de una QCM**

### **6.1 Introducción**

Las múltiples dificultades encontradas en el desarrollo de las ecuaciones de Hasimoto para el caso de un sistema de Navier-Stokes no estacionario impidieron obtener un modelo matemático analítico simple y con significado físico que incluyera los efectos de las condiciones de contorno armónicas en el modelo de Arnau. El estudio previo derivó en un modelo demasiado complejo y poco práctico.

Posteriormente, se pensó que quizá el estudio del problema mediante el uso de métodos numéricos permitiría comprender mejor el efecto de la superficie rugosa del sensor de cuarzo. El objetivo era llegar a un modelo semiempírico-analítico a partir del modelo simple de Arnau, del desarrollo realizado en el capítulo anterior basado en las ecuaciones de Hasimoto y de simulaciones numéricas que contemplaran el efecto de las interferencias entre casquetes vecinos.

Como punto de partida para modelar el efecto rugoso en la superficie del cuarzo, se trató de modelar el comportamiento de un cristal resonador de cuarzo no rugoso en corte-AT en vacío. Para ello, se recurrió al programa comercial ANSYS, basado en el método de los elementos finitos (FEM, 'Finite Element Method') (ver apéndice C).

### **6.2 Determinación del software de simulación FEM**

El desarrollo de una aplicación propia para realizar las simulaciones basadas en el método de los elementos finitos que se prevén en este trabajo de investigación quedó descartado desde un primer momento. El objetivo final de la tesis es el de comprender mejor la naturaleza de la rugosidad y los efectos de ésta sobre la respuesta del cristal resonador de cuarzo. El desarrollo de una aplicación propia no hubiera supuesto una aportación en este sentido y, como pudo comprobarse durante el transcurso de la tesis, la programación de una aplicación suficientemente potente que hubiera permitido el modelado, discretización, resolución y representación del problema planteado, de la forma en que lo permiten los programas comerciales, aparte de la dificultad que ello habría entrañado, quedaba totalmente fuera del objetivo de este trabajo.

Como se ha comentado en la introducción de este capítulo, el software escogido para la realización de las simulaciones numéricas requeridas en esta tesis ha sido el ANSYS Workbench 11. Esta elección viene determinada por la capacidad que tiene la aplicación para trabajar con campos acoplados (ver apéndice C). Así, ANSYS permite modelar el efecto piezoeléctrico, ya que trabaja simultáneamente con grados de libertad eléctricos y mecánicos.

### 6.3 Modelado del cristal resonador de cuarzo en corte AT

El modelo geométrico del cristal de cuarzo se realiza directamente en el interfaz de diseño gráfico del programa ANSYS. Su espesor, de 166 $\mu\text{m}$ , viene determinado por la frecuencia de resonancia escogida, que en nuestro caso es de 10 MHz. El modelo del cristal es circular y está formado por dos regiones concéntricas. La región interior representa la zona del sensor donde se ha depositado oro, tanto en la cara superior como inferior, para formar los electrodos y su diámetro es de 5 mm. El espesor de dicho electrodo en ambas caras es de 200 nm. La región exterior, representa la zona del sensor donde no existe electrodo y su diámetro es de 14 mm (ver Figura 6. 1).

Debido a la naturaleza anisótropa del cuarzo, las ecuaciones constitutivas, es decir, aquellas ecuaciones que relacionan las magnitudes electromecánicas: elásticas, eléctricas y piezoeléctricas, entre tensiones, deformaciones, campo eléctrico y carga eléctrica, tienen el siguiente aspecto:

$$\{T\} = [c^E]\{S\} - [e]\{E\} \quad (6.1)$$

$$\{D\} = [e]^T\{S\} - [\epsilon^S]\{E\} \quad (6.2)$$

Donde  $\{T\}$  y  $\{S\}$  son los vectores de tensiones y deformaciones respectivamente,  $\{D\}$  y  $\{E\}$  son los vectores de desplazamiento eléctrico y de campo eléctrico respectivamente; y  $[c^E]$ ,  $[e]$  y  $[\epsilon^S]$  se corresponden con las matrices de constantes elásticas, piezoeléctricas y dieléctricas respectivamente. Los valores de las propiedades físicas de los materiales que conforman el sensor: cuarzo y oro han sido extraídos de la bibliografía [Lu05, Beaver68, Bottom82]. Sus valores para el cuarzo en corte-AT y oro se muestran en la Tabla 6. 1 y en la Tabla 6.2.



**Tabla 6. 1.** Valores de las matrices de constantes dieléctricas, elásticas y piezoeléctricas para el cristal de cuarzo en corte-AT

Matriz de constantes dieléctricas $[\epsilon^S]$	$\begin{pmatrix} 39.21 & 0 & 0 \\ 0 & 39.82 & 0.86 \\ 0 & 0.86 & 40.42 \end{pmatrix} \cdot 10^{-12}$
Matriz de constantes elásticas $[c^E]$	$\begin{pmatrix} 86.74 & -8.25 & 27.15 & -3.66 & 0 & 0 \\ -8.25 & 129.77 & -7.42 & 5.7 & 0 & 0 \\ 27.15 & -7.42 & 102.83 & 9.92 & 0 & 0 \\ -3.66 & 5.7 & 9.92 & 38.61 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 68.81 & 2.53 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 2.53 & 29.01 \end{pmatrix} \cdot 10^9$
Matriz de constantes piezoeléctricas $[e]$	$\begin{pmatrix} 0.171 & -0.152 & -0.0187 & 0.067 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0.108 & -0.095 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -0.0761 & 0.067 \end{pmatrix}$

**Tabla 6. 2.** Densidades del oro y del cuarzo

$\rho$ oro	18500	kg/m <sup>3</sup>
$\rho$ cuarzo	2650	kg/m <sup>3</sup>

Las propiedades descritas en la Tabla 6. 1 se han obtenido a partir de las propiedades del cuarzo base aplicando fórmulas de rotación [Cady64, Bottom82, Beaver68].

El espesor típico de las capas de oro depositadas como electrodos en los cristales de cuarzo reales oscila entre 100 y 300 nm. Si comparamos estos valores típicos con el espesor del cristal de cuarzo de 10 MHz, 166  $\mu$ m, se observa que son varios órdenes de magnitud menores. Éste hecho dificulta enormemente el modelado de los electrodos. Si se tratara de modelar geoméricamente los electrodos, el tamaño de los elementos necesarios para mallarlos adecuadamente sería muy pequeño, incrementándose su número extraordinariamente. El coste computacional para resolver un modelo tan grande (con tantos elementos) haría inabordable la solución del problema.

La posibilidad de despreciar el efecto de los electrodos y no incluirlos en el modelo es inaceptable puesto que se obviaría el importante efecto de atrapamiento de energía (“energy trapping”) [Shockley66, Shen03, Shen04-1, Shen04-2, Efimov06], en el que la densidad de masa que imponen los electrodos concentra la energía del fenómeno resonante justamente en la región donde se encuentran éstos. Para resolver este problema, se trata de modelar indirectamente el efecto de los electrodos.

Según varios autores, entre los que destaca Mindlin, el efecto de los electrodos sería equivalente a incrementar en la forma adecuada la densidad del cuarzo en la región sobre la cual éstos han sido depositados [Mindlin66, Beaver68, Pao04]. Este incremento se denomina ‘mass loading’ y viene determinado por el factor expresado en la fórmula (6.3):

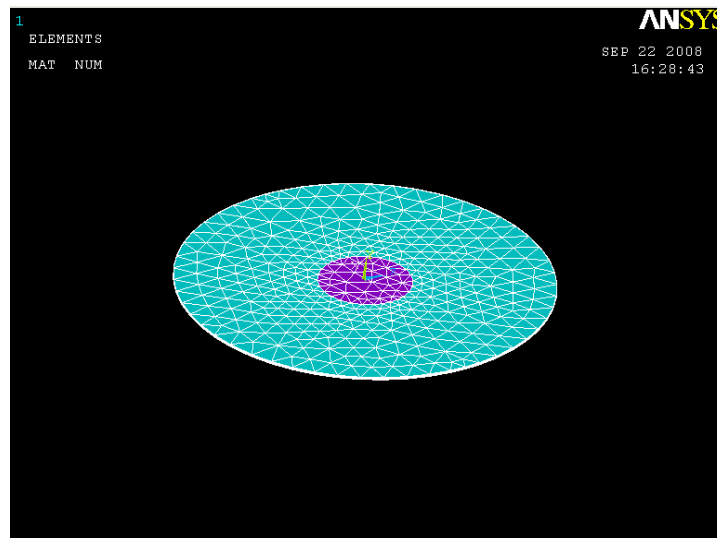
$$R = \frac{2\rho_e h_e}{\rho_c h_c} \quad (6.3)$$

Donde  $\rho_e$ , es la densidad del electrodo, en este caso oro;  $h_e$ , es el espesor del electrodo;  $\rho_c$ , es la densidad del cuarzo y  $h_c$  su espesor. La densidad equivalente del cristal de cuarzo en la zona donde se encuentran los electrodos sería:

$$\rho_c^{eq} = \rho_c (1 + R) \quad (6.4)$$

Por tanto, en este trabajo el cristal de cuarzo ha sido modelado con un espesor de 166 micras y el efecto de los electrodos ha sido contemplado como una variación en la densidad del cristal de cuarzo en la región central del sensor, donde los electrodos están depositados. En la Figura 6. 1 se puede observar en color violeta dicha región y en azul el resto del sensor de cuarzo.

En la Tabla 6. 3, se muestra el valor de la densidad efectiva que debe asignarse al cuarzo para modelar diferentes espesores del electrodo de oro.

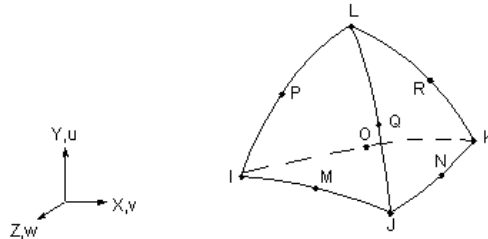


**Figura 6. 1.** Modelo FEM mallado de un cristal resonador de cuarzo

**Tabla 6. 3.** Variación del parámetro R en función del espesor del electrodo

$h_e$ (m)	$\rho_e * h_e$ (kg/m <sup>2</sup> )	R	$\rho_c^{eq}$ (kg/m <sup>3</sup> )
1.00E-07	1.85E-03	0.00839078	2672.23558
2.00E-07	3.70E-03	0.01678157	2694.47115
3.00E-07	5.55E-03	0.02517235	2716.70673
4.00E-07	7.40E-03	0.03356313	2738.94231
5.00E-07	9.25E-03	0.04195392	2761.17788
6.00E-07	1.11E-02	0.0503447	2783.41346

Una vez finalizado el modelado geométrico, e introducidas las propiedades físicas en la aplicación, el siguiente paso fue discretizar el dominio continuo (ver apéndice C). Para ello, se escogió uno de los múltiples tipos de elemento con los que puede trabajar la aplicación ANSYS. El más adecuado para nuestro problema resulta ser el llamado SOLID 98. Éste elemento, es un tetraedro de 10 nodos que presenta un comportamiento de desplazamiento cuadrático. Sus nodos pueden tener hasta 6 grados de libertad incluyendo variables estructurales, térmicas y eléctricas. Además, acepta como parámetros de entrada matrices elásticas anisótropas, matrices de permitividad y matrices piezoeléctricas. En la Figura 6. 2 se puede observar la geometría de dicho elemento (ver apéndice C).



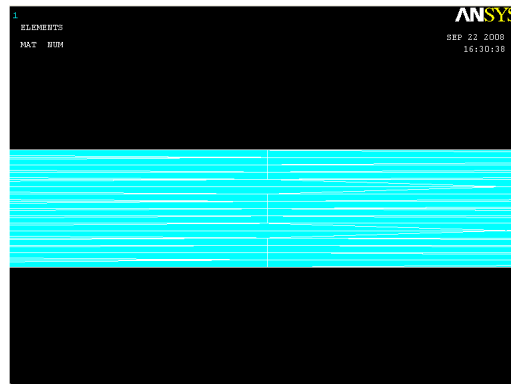
**Figura 6. 2.** Esquema del elemento Solid 98

El sistema de ecuaciones que rige el comportamiento de este elemento está basado en el método del acoplamiento fuerte ('Strong') (ver apéndice C). Tras aplicar el principio variacional y la discretización de elementos finitos [Allik70], este sistema de ecuaciones puede expresarse como:

$$\begin{pmatrix} [M] & [0] \\ [0] & [0] \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} \{\ddot{u}\} \\ \{\ddot{v}\} \end{Bmatrix} + \begin{pmatrix} [C] & [0] \\ [0] & [C^{th}] \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} \{\dot{u}\} \\ \{\dot{v}\} \end{Bmatrix} + \begin{pmatrix} [K] & [K^z] \\ [K^z] & -[K^d] \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} \{u\} \\ \{v\} \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} \{F\} \\ \{L\} \end{Bmatrix} \quad (6.5)$$

donde  $[M]$ ,  $[C]$  y  $[K]$  son respectivamente, la masa del elemento y las matrices de pérdidas y de rigidez del elemento.  $[K^d]$  y  $[K^z]$  se corresponden con la matriz dieléctrica y la matriz de acoplamiento piezoeléctrico respectivamente.  $[C^{vh}]$  es la matriz de pérdidas dieléctricas.  $\{F\}$  y  $\{L\}$  son el vector de fuerza estructural y el vector de carga eléctrica nodal respectivamente. Finalmente,  $\{u\}$  y  $\{V\}$  son el vector de desplazamientos y el potencial eléctrico y  $\{\dot{u}\}$ ,  $\{\dot{V}\}$ ,  $\{\ddot{u}\}$ ,  $\{\ddot{V}\}$  son sus correspondientes primeras y segundas derivadas. Las ecuaciones de acoplamiento que definen el comportamiento de todo el modelo, que representa el cristal resonador de cuarzo completo, se construyen a partir de la ecuación (6.5) para cada elemento.

Debido a la geometría circular del cristal de cuarzo, se realiza un mallado irregular de la superficie y se extruyen los elementos en la dirección del espesor. Es muy importante, en el caso de nuestro modelo, tener una buena resolución nodal en la dirección del espesor, puesto que la teoría predice que el modo fundamental del cristal resonador de cuarzo es de cizalla. Si el modelo no tuviese una resolución adecuada en esta dirección, la simulación proporcionaría unos resultados erróneos, tanto en los valores de la amplitud del desplazamiento elástico de las partículas como en los valores de frecuencia de resonancia. En el caso peor, cuando la resolución fuese muy deficiente, el modelo ni siquiera podría reproducir el modo fundamental. En nuestro caso, la presencia de 16 elementos en la dirección del espesor es suficiente para capturar adecuadamente los modos fundamentales del sensor. En la Figura 6. 3 se puede apreciar un detalle del mallado en la dirección del espesor.



**Figura 6. 3.** Detalle del mallado del modelo FEM del cristal resonador de cuarzo en la dirección del espesor

## 6.4 Modos fundamentales del cristal de cuarzo

Con el fin de validar el modelo del cristal resonante de cuarzo realizado, se propuso estudiar en primera instancia, los modos fundamentales de vibración y compararlos con los teóricos esperados. Se realizó un análisis de tipo modal, únicamente válido si en el modelo no existen excitaciones o condiciones de contorno variables con el tiempo. Este tipo de análisis se usa para calcular las frecuencias naturales de vibración y la forma modal. La ecuación del movimiento para un sistema sin pérdidas expresada en notación matricial es:

$$[M]\{\ddot{u}\} + [K]\{u\} = \{0\} \quad (6.6)$$

donde  $[M]$  y  $[K]$  son, respectivamente, la masa del elemento y de rigidez del elemento.  $\{u\}$  y  $\{\ddot{u}\}$  son el vector de desplazamientos y el vector de aceleraciones, respectivamente. En un sistema lineal, las vibraciones libres son armónicas de la forma:

$$\{u\} = \{\phi\}_i \cos \omega_i t \quad (6.7)$$

donde  $\omega_i$  representa la pulsación natural  $i$ ,  $\{\phi\}_i$  es el autovector que representa la forma del modo que se corresponde con la pulsación natural  $i$  y  $t$  es el tiempo. Al sustituir la ecuación (6.7) en la ecuación (6.6) se obtiene:

$$(-\omega_i^2 [M] + [K])\{\phi\}_i = \{0\} \quad (6.8)$$

Esta igualdad se satisface tanto si  $\{\phi\}_i = \{0\}$  como si el determinante de  $-\omega_i^2 [M] + [K]$  es igual a cero. Como la primera opción es trivial, procederemos a evaluar la segunda:

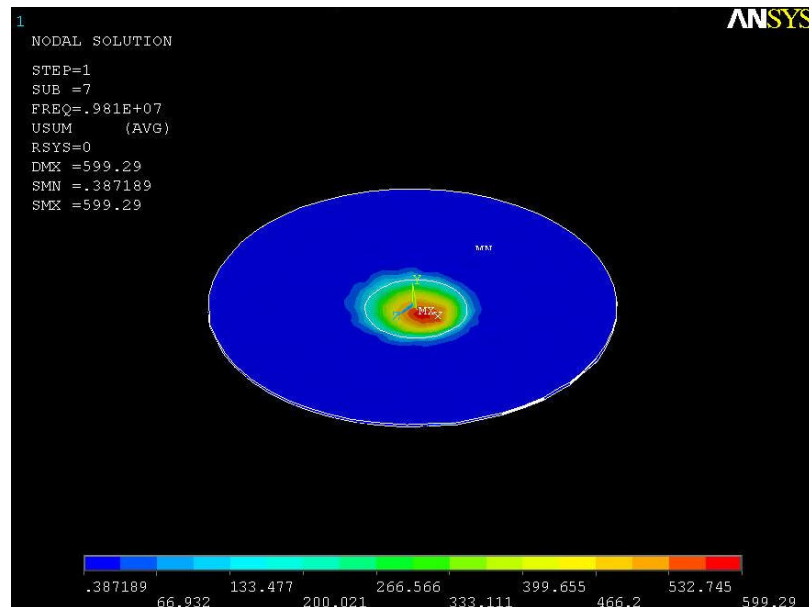
$$|[K] - \omega^2 [M]| = 0 \quad (6.9)$$

La ecuación (6.9) determina un problema de autovalores que puede ser resuelto para hasta  $n$  valores de  $\omega^2$  y  $n$  autovectores  $\{\phi\}_i$ , siendo  $n$  el número de grados de libertad. Así calcularemos la frecuencia natural de los modos  $f_i$ , a partir de la ecuación (6.10).

$$f_i = \frac{\omega_i}{2\pi} \quad (6.10)$$

Debido a las restricciones de este tipo de análisis, no se impondrán excitaciones eléctricas en el modelo. La única condición de contorno que se aplicará será estructural. Se restringirá a 0 el grado de libertad que representa el desplazamiento en el eje paralelo al espesor con el fin de modelar el soporte sobre el que está depositado el cristal. En la Figura 6. 4 puede observarse el módulo del desplazamiento mecánico del primer modo de vibración de cizalla obtenido por el programa. El modelo del cristal resonador de cuarzo se encuentra en el plano XZ, mientras que el eje Y es paralelo a la dirección del espesor. El color rojo representa deformaciones grandes, cercanas a 600 strain mientras que el color azul representa deformaciones mínimas, próximas a 0, tal y como indica la barra de colores de la parte inferior de la figura.

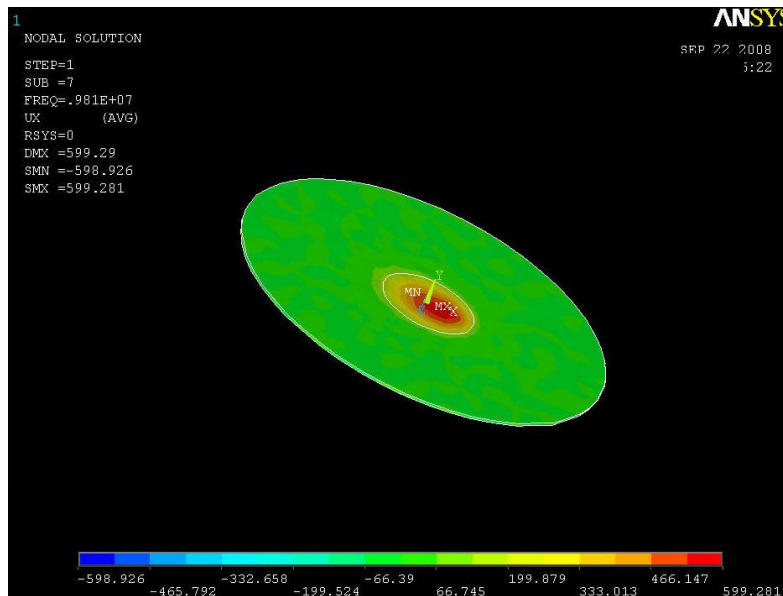
Se puede observar en la Figura 6. 4 que casi todo el desplazamiento está concentrado en el centro del sensor, exactamente bajo la región donde se supone debe estar el electrodo. Tal y como se esperaba, se aprecia el efecto de 'energy trapping'. La frecuencia de resonancia obtenida, de 9.885 MHz, se corresponde bastante bien con la esperada para el modo fundamental resonante serie de un cristal de cuarzo de esas características.



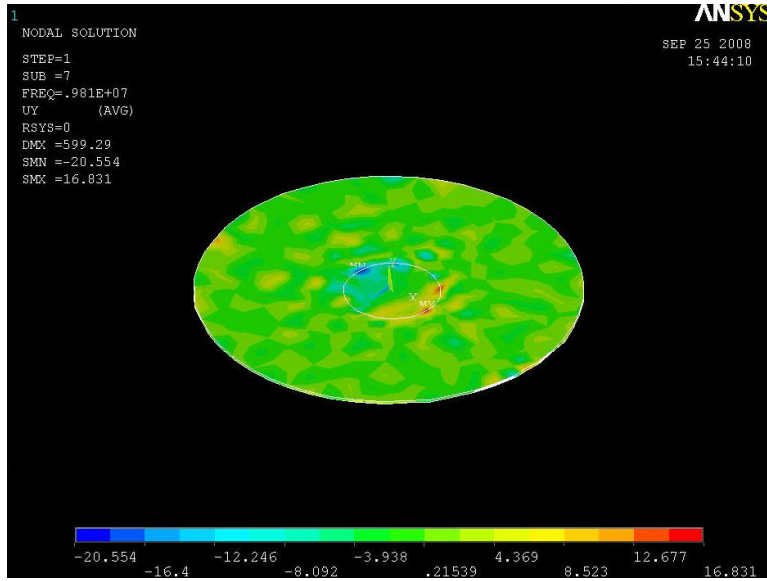
**Figura 6. 4.** Módulo del desplazamiento mecánico del primer modo de resonancia fundamental obtenido para el modelo del cristal de cuarzo resonante en corte-AT

En la Figura 6.5 se representa el desplazamiento del modelo exclusivamente en la dirección del eje X. Con color rojo se representan desplazamientos máximos del orden de 600 strain en sentido positivo, mientras que con verde se representan desplazamientos nulos y con azul desplazamientos máximos en el sentido negativo del eje X. Se hace notar que todos los nodos de la zona donde se han depositado los electrodos se mueven en fase en el sentido positivo de dicho eje X, mientras que la deformación en el resto del sensor es prácticamente nula.

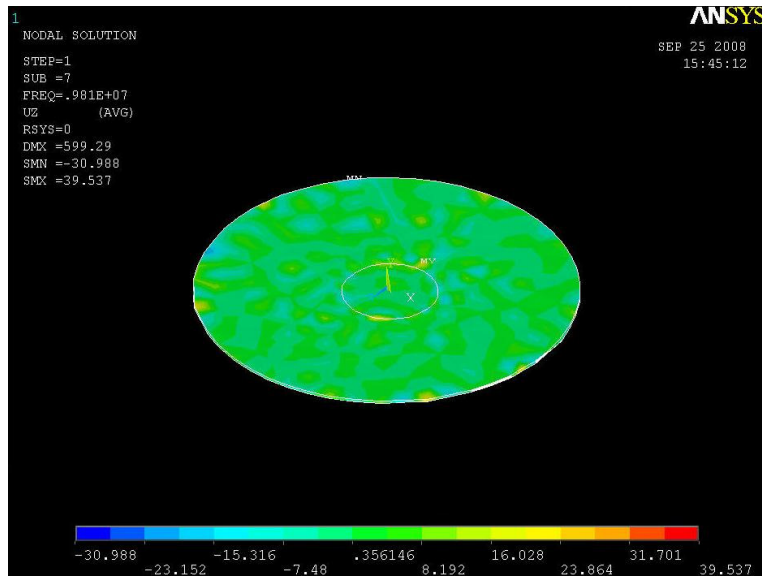
En las siguientes figuras (Figura 6.6, Figura 6.7), se representan los movimientos en los ejes Y y Z. En la barra de colores que muestra la amplitud de la vibración de las respectivas figuras se puede apreciar que la magnitud máxima de los desplazamientos es de aproximadamente 20 strain para el eje Y, y aproximadamente 40 strain para el eje Z. Si comparamos estas magnitudes con los valores de deformación obtenidos en la dirección del eje X, de aproximadamente 600 strain, se puede concluir que el desplazamiento en la dirección del eje X predomina, ya que es un orden de magnitud superior al desplazamiento mecánico en las direcciones Y y Z.



**Figura 6.5.** Desplazamiento mecánico del primer modo de resonancia fundamental obtenido para el modelo del cristal de cuarzo resonante en corte-AT en la dirección X



**Figura 6.6.** Desplazamiento mecánico del primer modo de resonancia fundamental obtenido para el modelo del cristal de cuarzo resonante en corte-AT en la dirección Y

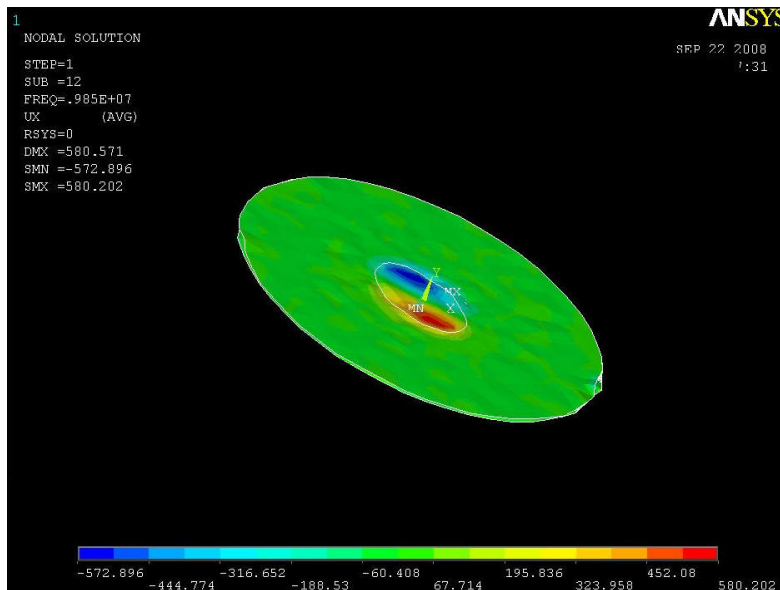


**Figura 6.7.** Desplazamiento mecánico del primer modo de resonancia fundamental obtenido para el modelo del cristal de cuarzo resonante en corte-AT en la dirección Z

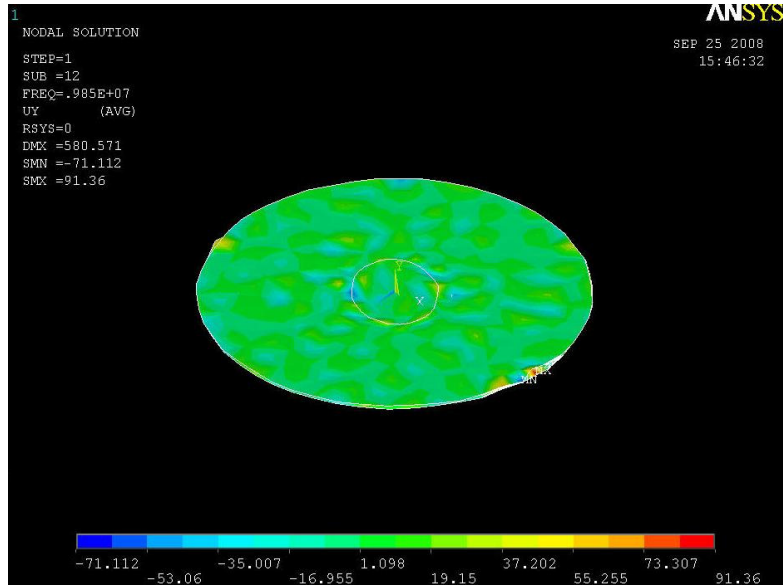


Tras analizar el primer modo de resonancia, se puede concluir que el modelo responde al comportamiento típico del modo resonante fundamental de un cristal de cuarzo en corte-AT. El segundo modo de vibración fundamental de cizalla también tiene un patrón de movimiento dirigido principalmente en el eje X. En este caso, el desplazamiento también está concentrado en la región del electrodo pero aparece un nodo en el centro del sensor dividiendo el patrón simétricamente como se puede observar en la Figura 6. 8. Se aprecian deformaciones máximas del orden de 580, tanto en el sentido positivo como en el negativo del eje X. La frecuencia de resonancia fundamental de este modo es de 9.902 MHz.

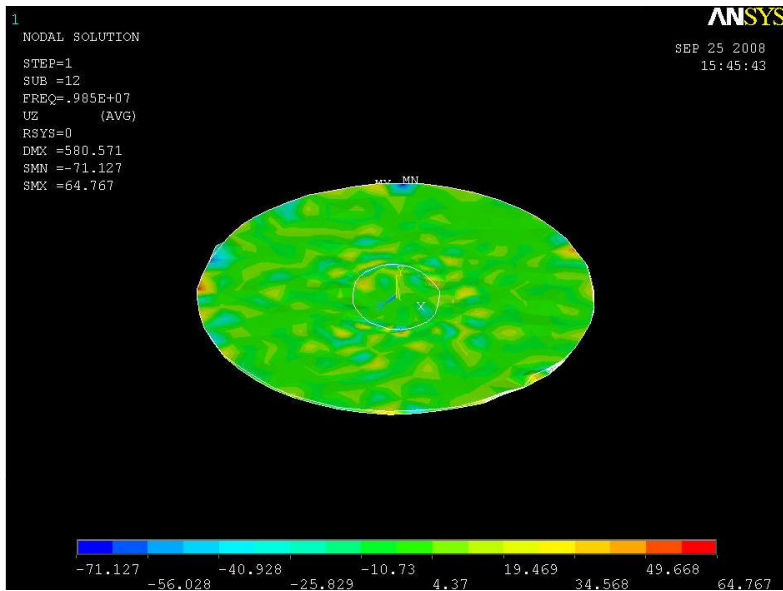
Al observar la Figura 6. 9 y la Figura 6. 10, donde se representan los desplazamientos mecánicos del segundo modo de vibración en las direcciones Y y Z, se observa en la barra de colores inferior que los desplazamientos máximos son del orden de 90 y 70 respectivamente. Se llega a la conclusión de que, a pesar de que la amplitud de vibración en la dirección X sigue predominando, la diferencia no es tan grande como en el modo primero. Eso significa que este modo de cizalla no es tan puro como el anterior.



**Figura 6. 8.** Desplazamiento mecánico en la dirección X del segundo modo de vibración de cizalla del cristal resonador de cuarzo en corte-AT



**Figura 6. 9.** Desplazamiento mecánico en la dirección Y del segundo modo de vibración de cizalla del cristal resonador de cuarzo en corte-AT



**Figura 6. 10.** Desplazamiento mecánico en la dirección Z del segundo modo de vibración de cizalla del cristal resonador de cuarzo en corte-AT

## 6.5 Respuesta en frecuencia del cristal de cuarzo

Una vez conocidos los modos fundamentales de cizalla del cristal resonador de cuarzo, trataremos de conocer su comportamiento en frecuencia. Para ello realizaremos un análisis armónico.

El análisis de la respuesta armónica resuelve las ecuaciones del movimiento de un sistema dependiente del tiempo para estructuras lineales que han alcanzado una vibración estacionaria. Todas las excitaciones tanto eléctricas como mecánicas deben variar sinusoidalmente a la frecuencia a la que se realiza el análisis. Para llevar a cabo dicho análisis, se considera la ecuación (6.11) .

$$[M]\{\ddot{u}\} + [C]\{\dot{u}\} + [K]\{u\} = \{F^a\} \quad (6.11)$$

Donde  $\{F^a\}$  es el vector de fuerzas aplicadas. La ecuación (6.5) es la que realmente determina la física de nuestro problema, pero usaremos la ecuación (6.11) para explicar este tipo de análisis, sin pérdida de generalidad.

Se supone que todos los puntos en la estructura se mueven a la misma frecuencia conocida, sin embargo, no necesariamente en fase. Además, si existen pérdidas, se producirán variaciones de fase adicionales. Así, los desplazamientos en la estructura pueden definirse como:

$$\{u\} = \{u_{\max} e^{j\phi}\} e^{j\Omega t} \quad (6.12)$$

Donde  $u_{\max}$  se corresponde con el máximo desplazamiento,  $\phi$  es el desfase en radianes, y  $\Omega$  la pulsación de trabajo. El uso de notación compleja permite describir la solución de forma compacta y eficiente. La ecuación (6.12) se puede reescribir de la forma:

$$\{u\} = \{u_{\max} (\cos \phi + j \sin \phi)\} e^{j\Omega t} \quad (6.13)$$

O como:

$$\{u\} = (\{u_1\} + j\{u_2\}) e^{j\Omega t} \quad (6.14)$$

donde  $\{u_1\} = \{u_{\max} \cos \phi\}$  es el vector de desplazamientos real y  $\{u_2\} = \{u_{\max} \sin \phi\}$  el vector de desplazamientos imaginario. El vector de fuerzas se puede definir análogamente al desplazamiento:

$$\{F\} = \{F_{\max} e^{j\phi}\} e^{j\Omega t} \quad (6.15)$$

$$\{F\} = \{F_{\max} (\cos \phi + j \sin \phi)\} e^{j\Omega t} \quad (6.16)$$

$$\{F\} = (\{F_1\} + j\{F_2\}) e^{j\Omega t} \quad (6.17)$$

donde  $F_{\max}$  es la amplitud de la fuerza,  $\{F_1\} = \{F_{\max} \cos \phi\}$  es el vector de fuerzas real y  $\{F_2\} = \{F_{\max} \sin \phi\}$  es el vector de fuerzas imaginario.

Sustituyendo las ecuaciones (6.14) y (6.17) en la ecuación (6.11) se obtiene:

$$(-\Omega^2 [M] + j\Omega [C] + [K]) (\{u_1\} + j\{u_2\}) e^{j\Omega t} = (\{F_1\} + j\{F_2\}) e^{j\Omega t} \quad (6.18)$$

La dependencia temporal aparece en los dos lados de la igualdad en la ecuación (6.18) y por lo tanto, puede ser eliminada dando lugar a:

$$(-\Omega^2 [M] + j\Omega [C] + [K]) (\{u_1\} + j\{u_2\}) = (\{F_1\} + j\{F_2\}) \quad (6.19)$$

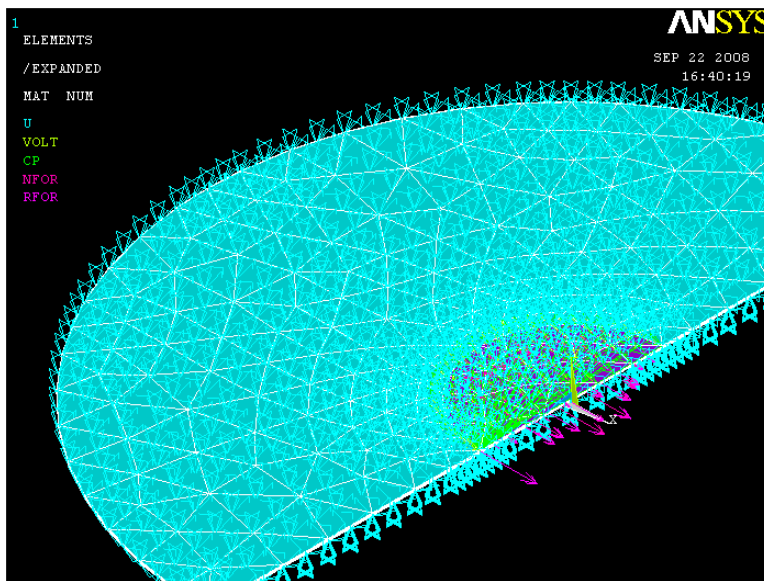
Finalmente, podemos escribir la ecuación anterior de la forma:

$$[K_c] \{u_c\} = \{F_c\} \quad (6.20)$$

donde el sufijo  $c$ , denota una matriz o vector complejo. La ecuación (6.20) se resuelve como cualquier sistema algebraico usando aritmética compleja.

Una vez explicados los fundamentos del análisis, se aplican las condiciones de contorno adecuadas (ver apéndice C). Estas condiciones de contorno, deben ser eléctricas y estructurales ya que se va a realizar un análisis de campos acoplados (ver apéndice C). Las condiciones de contorno eléctricas servirán para modelar la excitación a la que se ve sometido un sensor de cuarzo cuando se conecta a un circuito electrónico. Se considerará que todos los nodos que forman parte de la superficie superior de la región central del modelo forman parte del electrodo superior. Entonces, dichos nodos deben ser equipotenciales, y su grado de libertad de tensión será igual para todos ellos (nodos acoplados). De igual manera, todos los nodos que forman parte de la superficie inferior central del modelo, formarán parte del electrodo inferior y su grado de libertad de tensión será igual para todos ellos. Una vez fijadas las condiciones de contorno eléctricas, se fijan las condiciones de contorno estructurales. Al igual que en el análisis de los modos fundamentales, limitaremos a 0 el grado de libertad que representa el desplazamiento en el eje paralelo al espesor con el fin de modelar el soporte sobre el que está depositado el cristal. Estas condiciones de contorno se pueden observar en la Figura 6.11, donde puede observarse que el modelo se ha reducido simétricamente con respecto al modelo usado en la extracción de los

modos fundamentales. El análisis transitorio, debido a su naturaleza, requiere de muchos más recursos para su realización que el análisis modal. Con el fin de poder realizar el análisis en un tiempo razonable, consumiendo los mínimos recursos posibles de hardware, se decidió aprovechar la simetría del sensor. Esta simplificación no influye en el resultado final de la simulación y reduce considerablemente el coste computacional. En el modelo de la Figura 6. 11 se han aplicado dos tipos de simetría diferentes. En un primer paso, se ha aplicado simetría impar en el eje Y, dividiendo el modelo en dos en la dirección del espesor. En un segundo paso, se ha aplicado simetría par en el eje X, dividiendo el modelo al que habíamos aplicado simetría impar de nuevo en dos. Esta simetría se traduce, en el modelo, en la aplicación de nuevas condiciones de contorno mecánicas en los nodos que se encuentran en los planos de simetría seleccionados.

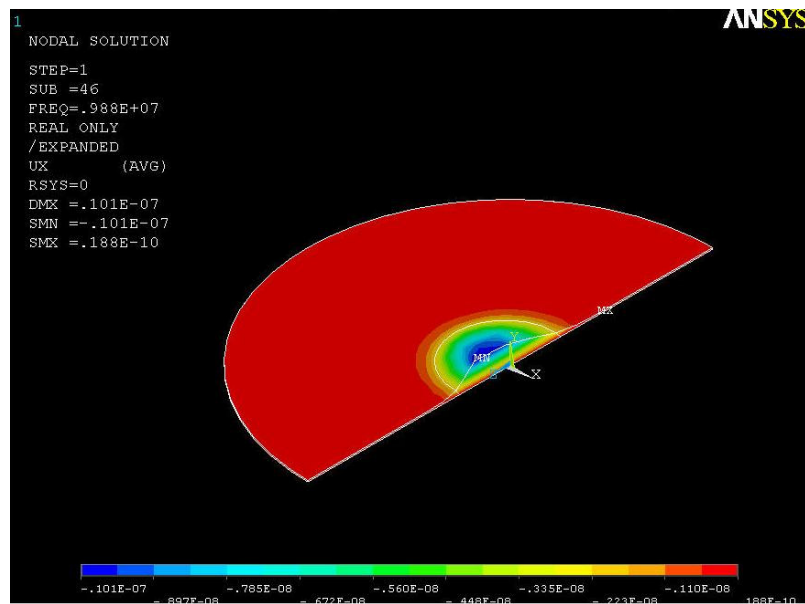


**Figura 6. 11.** Modelo FEM para un cristal resonador de cuarzo en corte-AT en el que se ha aplicado simetría y condiciones de contorno mecánicas y eléctricas

Una vez finalizado el proceso de aplicación de simetría se procede a simular el modelo. Para ello se escoge un rango de frecuencias de simulación que irán desde 9.84 MHz hasta 9.90 MHz. En este rango se tomaron 60 puntos de análisis. Tal y como se esperaba, debido a la excitación introducida en el modelo a través de las condiciones de contorno eléctricas, se consigue excitar el modo de cizalla fundamental

como se puede observar en la Figura 6.12. En esta figura, puede observarse que el desplazamiento de las partículas en la dirección del eje X se concentra en la región bajo el electrodo, y tiene una amplitud máxima de decenas de nm. En la Figura 6.13 y en la Figura 6.14 podemos observar que los desplazamientos de las partículas en las direcciones de los ejes Y y Z son hasta tres órdenes de magnitud menores. Éstos resultados confirman que, si el diseño del cristal resonador de cuarzo y la excitación eléctrica son los adecuados, se puede obtener una vibración de cizalla de una pureza elevadísima. Como se puede ver en la Figura 6.13 y en la Figura 6.14, los mayores desplazamientos en los ejes Y y Z se producen en la región bajo el electrodo. Éste efecto no se observaba en la simulación modal debido a la ausencia de excitación eléctrica.

En la Figura 6.15 puede observarse en forma de vector el desplazamiento eléctrico calculado en la simulación. Como cabía esperar, este campo es perpendicular a la superficie del sensor y está concentrado en la región bajo los electrodos donde se aplica la excitación a partir de un potencial eléctrico alterno.



**Figura 6.12.** Desplazamiento mecánico en la dirección X obtenido en el análisis armónico del cristal resonador de cuarzo en corte-AT

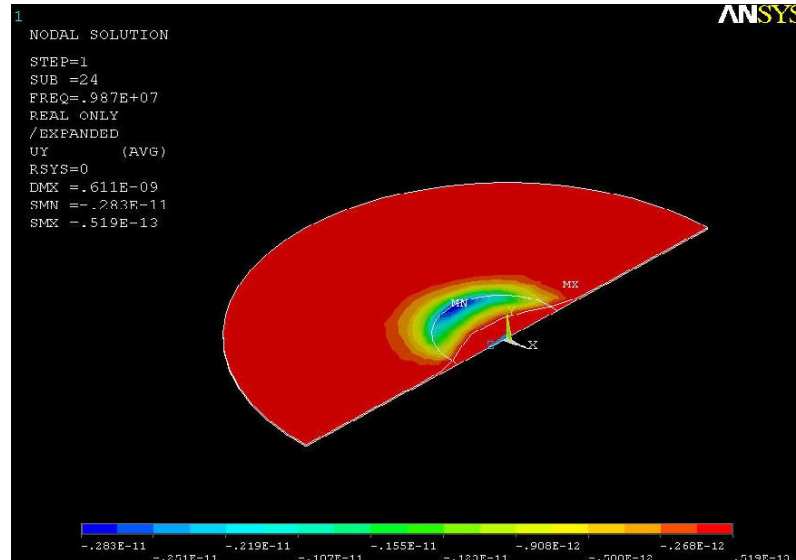


Figura 6. 13. Desplazamiento mecánico en la dirección Y obtenido en el análisis armónico del cristal resonador de cuarzo en corte-AT

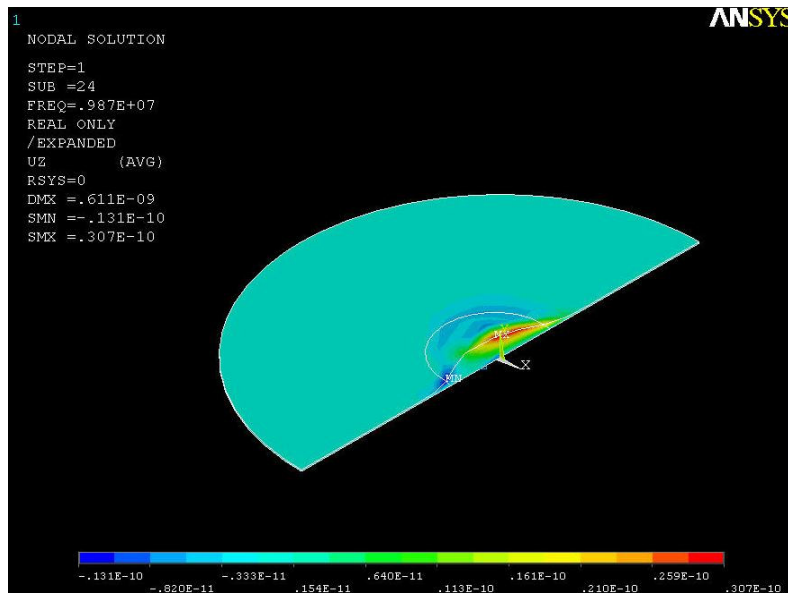
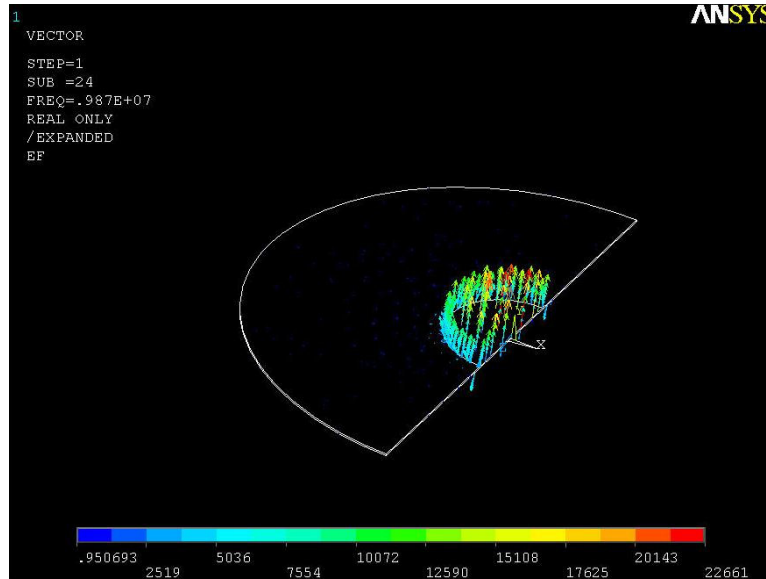


Figura 6. 14. Desplazamiento mecánico en la dirección Z obtenido en el análisis armónico del cristal resonador de cuarzo en corte-AT



**Figura 6.15.** Representación del vector de campo eléctrico en el análisis armónico en frecuencia del cristal resonador de cuarzo

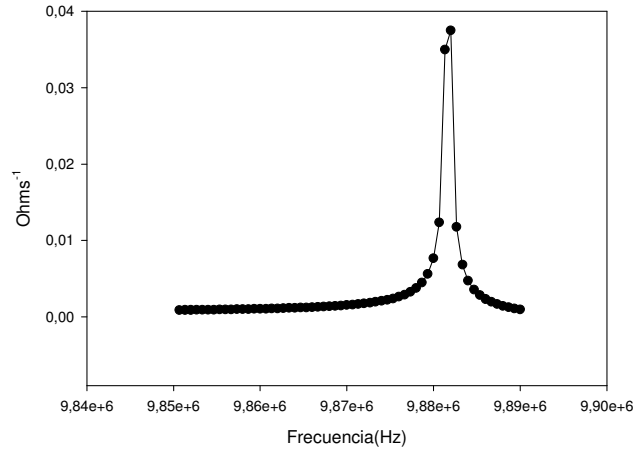
En la Figura 6.16 representamos el espectro del módulo de la admitancia eléctrica del sensor calculado por el programa. Se puede observar el espectro típico de un cristal resonador de cuarzo con una resonancia de un factor de calidad muy elevado. Esta resonancia a la frecuencia de 9.885 aproximadamente, coincide de manera adecuada con la frecuencia del modo fundamental de resonancia obtenida en el análisis modal del apartado 4.3. Hemos de hacer notar aquí, que en esta simulación no se han incluido efectos de pérdidas en el cristal, considerándolo ideal. Así, los efectos amortiguamiento no se podrán observar en los resultados.

En la Figura 6.17, podemos observar el espectro de fases de la admitancia eléctrica del cristal resonador de cuarzo.

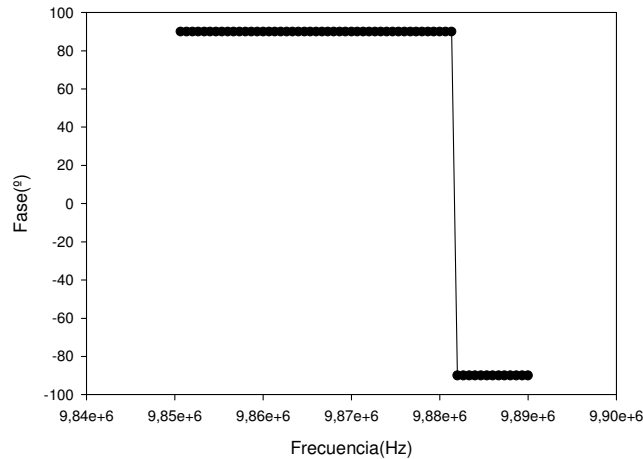
## 6.6 Conclusiones

Una vez validado el modelo FEM del resonador de cuarzo en vacío, el siguiente paso será el de modelar los efectos de un medio líquido situado en la superficie del cristal utilizando este mismo modelo. Posteriormente, se incluirán características rugosas en el modelo original, que permitirán comprobar el efecto de una superficie no lisa sobre la impedancia acústica del cuarzo.





**Figura 6. 16.** Espectro del módulo de la admitancia calculada en la simulación armónica



**Figura 6. 17.** Espectro de fase de la admitancia calculada en la simulación armónica

Si bien es posible modelar numéricamente el efecto del medio líquido sobre el sistema acoplado eléctrico-mecánico, mediante la técnica denominada FSI "fluid solid interaction" (ver apéndice C), la inclusión del efecto rugoso con unos parámetros de control específicos resulta mucho más complicada. La diferencia de escala entre la dimensión típica de la rugosidad y la dimensión del cristal es de varios órdenes de magnitud. Por lo tanto, el objetivo de mallar de un modo preciso la superficie rugosa sin

derivar en un modelo computacionalmente irresoluble, se hace poco menos que imposible.

Otro de los inconvenientes para continuar por este camino es que los modelos disponibles para generar la rugosidad son muy generales. Los parámetros que gobiernan dichos modelos, no son lo suficientemente flexibles para el propósito que se persigue.

Parece necesario, por lo tanto, cambiar el enfoque y buscar otro método que permita modelar el efecto de las interferencias entre casquetes de una manera efectiva. En la siguiente aportación, la principal de este trabajo de investigación, se describe cómo se llega a simular de manera adecuada este efecto mediante técnicas de computación de mecánica de fluidos (CFD, 'Computational Fluid Dynamics') basadas en el método numérico de los volúmenes finitos (FVM, 'Finite Volume Method'). Asimismo, se detalla el desarrollo de una corrección empírico-analítica para el modelo de Arnau, que incluye los efectos de interferencias de los casquetes vecinos.

El trabajo descrito en este capítulo ha servido, por un lado, al autor para dominar las herramientas necesarias para el desarrollo de esta tesis, y por otro, como punto de partida en la realización de un modelo numérico para representar el comportamiento de un dispositivo LFE ('Lateral Field Excitation'). Dicho modelo, descrito en el apéndice E, junto con el de los co-autores Ulrike Hempel, Ralf Lucklum, Peter Hauptmann, Errol P. EerNisse y Derek Puccio, ha sido publicado en: *Measurement Science and Technology* 19. (2008), bajo el título: '*Quartz crystal resonator sensors under lateral field excitation – A theoretical and experimental analysis*'. Asimismo, esta publicación ha merecido el premio 'Month's Publishers Choice 'Article of Interest'.

## **7. Aportación. Parte 5: Modelado mediante el método de los volúmenes finitos del efecto sobre la impedancia acústica de la rugosidad superficial**

### **7.1 Introducción**

La posibilidad de modelar mediante el método de los elementos finitos el cristal de cuarzo completo con una rugosidad asociada no es factible. Las escalas del cristal y la rugosidad difieren en varios órdenes de magnitud, por lo que un modelo completo sería inabordable computacionalmente hablando. A partir de este punto del trabajo trataremos de dividir el problema en partes. Una vez conocidas las amplitudes de los desplazamientos mecánicos que se producen en la superficie del sensor de cuarzo, tanto por la teoría [Martin93-1] como por las simulaciones realizadas en el capítulo anterior, podemos usarlas como condiciones de contorno en un modelo diferente. En esta aportación, se desarrolla un modelo a escala nanométrica de la rugosidad que representará solamente la superficie del cristal oscilando a 10 MHz en contacto con un medio líquido, en nuestro caso agua. Este modelo será resuelto numéricamente mediante el método de los volúmenes finitos (FVM, "Finite Volume Method").

Como ya se comentó en la parte 4 de la aportación de este trabajo de investigación, el desarrollo de una aplicación software que implemente el método FVM no es uno de los objetivos de esta tesis. Este desarrollo, limitaría en gran medida la posibilidad de realizar un estudio pormenorizado de los efectos rugosos. Por ello, se trabajará con el software comercial que se ajuste mejor a las necesidades del problema.

Una de las ventajas notables del uso de una aproximación numérica para resolver el problema en lugar de tratar de abordarlo simplemente a través del desarrollo de un modelo analítico basado en las ecuaciones de Hasimoto, es la inclusión de los efectos del término no lineal en las ecuaciones de Navier-Stokes. En el desarrollo de Hasimoto, este término no se tiene en cuenta debido a la complejidad del problema.

En primera instancia y para validar la técnica de modelado, se procede a simular la respuesta tanto de una superficie plana como de una esfera oscilando con una frecuencia de 10 MHz en un medio fluido. Los resultados de estas simulaciones se comparan con la teoría.

## 7.2 Fundamentos de la modelización

La dinámica de fluidos computacional, cuyo acrónimo en inglés es CFD, es una herramienta numérica usada para simular el comportamiento de sistemas relacionados con procesos físicos como el flujo de fluidos y la transmisión de calor. Esta herramienta funciona resolviendo el conjunto de ecuaciones que describen el flujo de fluido en una región de interés con unas condiciones de contorno específicas aplicadas en la frontera de esa región. Estas ecuaciones se conocen como las ecuaciones de Navier-Stokes, y describen los procesos de transferencia de momento, energía y masa en un fluido. Este conjunto de ecuaciones en derivadas parciales fueron planteadas a principios del siglo XIX y, a pesar del tiempo transcurrido, aún no tienen una solución analítica general conocida. Sin embargo, pueden ser discretizadas y resueltas numéricamente (ver apéndice FVM). Existen diversos métodos que pueden ser usados en los algoritmos CFD; el más común, y con el que trabajaremos, es el conocido como método de los volúmenes finitos (FVM) (ver apéndice volúmenes finitos). La metodología de la técnica CFD es la siguiente:

- En un primer paso, llamado pre-procesado, se define la región de interés y se malla, es decir, se divide el dominio en un número determinado de sub-dominios de menor tamaño (también llamados volúmenes de control, celdas o elementos) que no se solapan. La solución del problema (velocidad, presión, temperatura, etc.) se calculará en los nodos de cada sub-dominio. La precisión de la solución CFD, está relacionada con el número de elementos de la malla. En general, cuanto mayor es el número de elementos mejor es la precisión de la solución. Asimismo, cuanto mayor es el número de elementos mayor es el coste computacional (tiempo de simulación, hardware necesario) del problema. Posteriormente, se definen las propiedades físicas del fluido y las condiciones de contorno (velocidad, presión) en las fronteras de la región de interés. Además, se especifica qué tipo de proceso físico se desea modelar.
- En el segundo paso, denominado resolución (en la bibliografía anglosajona normalmente ‘solver’), se aproximan las variables del flujo desconocidas por medio de funciones simples para posteriormente sustituirlas en las ecuaciones de Navier-Stokes. Finalmente, tras las correspondientes transformaciones matemáticas, se resuelven las ecuaciones algebraicas resultantes.
- En el tercer y último paso, denominado post-procesado, se representan adecuadamente los resultados calculados en la simulación, generándose

gráficas, representaciones vectoriales e incluso animaciones que faciliten la interpretación física de éstos.

En esta aportación, se ha empleado el programa comercial CFD denominado CFX, que viene incorporado en el paquete ANSYS Workbench 11. La elección de dicho software, además de por las funcionalidades de éste, viene determinada por el uso que se hizo del mismo en la parte 4 de la aportación. Este uso generó unos conocimientos en el autor de este trabajo, que facilitaron mucho el correcto modelado de la rugosidad por medio de ANSYS Workbench 11.

### 7.2.1 Diseño geométrico y mallado

En esta aportación, se construirán diversos dominios geométricos que permitirán estudiar el efecto rugoso. Para ello, usaremos la herramienta de diseño que contiene el paquete de software ANSYS Workbench 11.

Los dominios geométricos diseñados son lo suficientemente extensos para evitar los efectos de bordes generados por la dimensión finita de la región de simulación.

Una vez definidas las regiones de interés procederemos a mallarlas. Existen principalmente dos tipos diferentes de mallas: estructuradas y no estructuradas. Las mallas estructuradas están compuestas por hexaedros, mientras que las mallas no estructuradas se caracterizan por una mezcla irregular de hexaedros, tetraedros y pirámides (ver apéndice D). En nuestro caso, usaremos mallas no estructuradas para poder trabajar con modelos que incluyan la característica denominada "inflación". En los problemas donde la contribución viscosa es importante, las regiones próximas a las superficies que limitan el fluido (llamadas normalmente "wall" en la bibliografía anglosajona) sufren habitualmente gradientes de velocidad muy grandes en la dirección normal a dichas superficies. Para obtener mallas con un coste computacional eficiente es necesario que los elementos tengan relaciones de aspecto grandes en estas regiones. Si se usaran tetraedros sería necesaria una malla muy fina, con un coste computacional prohibitivo, para evitar la generación de tetraedros distorsionados debido a una relación de aspecto muy elevada. La "inflación" tiene por objeto solucionar este problema usando prismas en lugar de tetraedros en estas regiones, obteniendo así mallas muy finas en la dirección normal a las superficies (donde los gradientes de velocidad son muy elevados) pero sin tanta resolución en la dirección paralela. Normalmente, se usa el método de "inflación" indicando tres parámetros. El número de capas de elementos que se van a generar, el espesor de la

primera capa de elementos (la más próxima a la superficie) y el llamado "factor de expansión". Esto es, el número por el que se multiplicará el espesor de la capa anterior para calcular el espesor de la nueva capa. Su valor siempre es  $>1$ , puesto que los elementos más próximos a la superficie son los que deben proporcionar mayor resolución.

Otra de las características que deben tener nuestras mallas es la posibilidad de deformarse. Esta propiedad es necesaria debido a las condiciones de contorno impuestas. La superficie inferior de nuestros modelos geométricos representa la superficie del cristal de cuarzo, es decir, la interfase sólido-líquido que oscila con un movimiento de cizalla. Para trasladar adecuadamente este movimiento, que influye en la velocidad del fluido, al modelo, es necesario que el mallado se pueda deformar en función del tiempo (ver apéndice D).

### **7.2.2 Diseño temporal de la simulación**

Todas las simulaciones realizadas en este trabajo de investigación han sido transitorias. Es decir, dependientes del tiempo. Esta elección viene determinada por el tipo de excitación usada en el modelo: el desplazamiento oscilatorio de una de las fronteras del dominio.

Para obtener unos resultados precisos y una buena convergencia en el cálculo es de vital importancia la elección del paso temporal con el que se realizará la simulación. Si las variaciones de las condiciones de contorno son muy grandes entre un paso temporal y otro, la convergencia de la simulación puede verse comprometida. La frecuencia de excitación del modelo es de 10 MHz. Se ha decidido emplear un paso temporal de 2 ns. Esta elección implica un paso temporal dos órdenes de magnitud menor que el periodo de variación de las condiciones de contorno. Por tanto, la variación de éstas entre instantes de tiempo consecutivos será suave.

La duración total de la simulación se ha establecido en 0.25  $\mu$ s, el equivalente a dos periodos y medio de la señal de excitación. Se pretende disponer de resultados significativos fuera del periodo inicial transitorio de la simulación.

### **7.2.3 Ecuación de estado**

La ecuación de estado es una ecuación constitutiva que describe el estado de la materia como una relación entre la temperatura, la presión, el volumen, la densidad, la viscosidad y otras funciones de estado asociadas con la materia. Es necesario conocer esta ecuación para poder resolver el sistema de Navier-Stokes. Normalmente, se presenta la densidad del fluido

como una función de la presión y la temperatura siguiendo ciertos modelos térmicos más o menos populares, por ejemplo: modelo de Van der Waals, modelo de Peng-Robinson, modelo de Beattie-Bridgeman...

En el presente trabajo de investigación se considerará el fluido como incompresible, es decir, se supondrá que la densidad y la viscosidad en el fluido no varían con la presión. Además, se supondrá una temperatura constante a lo largo de toda la simulación, con lo que la dependencia de la densidad y de la viscosidad con la temperatura también será nula. El fluido empleado en todas las simulaciones realizadas en esta tesis es agua. Se considerará el valor de la densidad como:

$$\rho = 997 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$$

Para la viscosidad del agua se tomará el valor de:

$$\eta = 0.0008899 \frac{\text{kg}}{\text{m} \cdot \text{s}}$$

#### 7.2.4 Modelado de flujo

Para simular correctamente el problema que se plantea en la presente tesis doctoral mediante el método de los volúmenes finitos, es prioritario conocer la naturaleza del mismo y escoger el modelo que represente adecuadamente el comportamiento del fluido en esas circunstancias. Fundamentalmente, es necesario conocer si el problema está gobernado por flujo laminar o flujo turbulento.

Las turbulencias consisten en fluctuaciones del fluido en el espacio y en el tiempo. Es un proceso muy complejo, principalmente debido a que es tridimensional, no estacionario y se reproduce a varias escalas diferentes. Las turbulencias pueden tener un efecto significativo en las características del flujo. Este fenómeno ocurre cuando las fuerzas inerciales en el fluido comienzan a ser importantes con respecto a las fuerzas viscosas y se caracteriza por un número de Reynolds elevado.

En principio, el sistema de ecuaciones de Navier-Stokes describe tanto el flujo laminar como el flujo turbulento sin necesidad de información adicional. Sin embargo, los flujos turbulentos con números de Reynolds realistas generan un gran rango de escalas, tanto espaciales como temporales, de turbulencia. Generalmente, las escalas espaciales de estas turbulencias son mucho menores que el volumen finito más pequeño que se puede usar de forma práctica en una simulación numérica. La simulación numérica directa de estos flujos requiere una potencia

computacional varios órdenes de magnitud mayor de la disponible en un futuro próximo.

Con el fin de predecir el comportamiento de los flujos turbulentos, se han destinado una gran cantidad de recursos en el campo CFD para conseguir modelos válidos. Los modelos de flujos turbulentos se han desarrollado específicamente para tener en cuenta los efectos de las turbulencias sin tener que recurrir a una malla prohibitivamente fina.

La elección incorrecta del modelo para nuestro problema derivará en la no convergencia de la simulación o la obtención de resultados incorrectos. Por ello, es necesario un estudio teórico previo que sirva de soporte a nuestra elección.

El cálculo del número de Reynolds en el caso de la superficie oscilante rugosa de un cristal resonador de cuarzo típico en contacto con un medio líquido revela que se trata de un problema de flujo laminar como se pone de manifiesto en la ecuación (1.19) de la introducción de este trabajo de investigación. Por lo tanto, no se incluirá el uso de modelos turbulentos en este trabajo, sino que se resolverá directamente la versión discretizada de las ecuaciones de Navier-Stokes.

### 7.2.5 Condiciones de contorno

La elección de las condiciones de contorno es un factor de vital importancia para asegurar la convergencia de la simulación (ver apéndice de FVM). En el modelado de todas las simulaciones realizadas en este trabajo de investigación se han usado principalmente tres tipos de condiciones de contorno.

Las superficies que representan el interfaz sólido-líquido se han modelado mediante una condición de contorno de "Muro" (Wall) móvil (ver apéndice D). Así, se ha indicado un desplazamiento en el interfaz en la dirección del eje X determinado por la ecuación:

$$1 \cdot 10^{-10} \sin(2\pi ft) \quad (7.1)$$

donde  $t$  corresponde al tiempo y  $f$  a la frecuencia con un valor de 10 MHz.

La ecuación (7.1) es exactamente la misma que determina el desplazamiento de las partículas en la superficie de un cristal resonador de cuarzo [Martin 93-1]. Se hace notar que en este trabajo de investigación se considera siempre en el interfaz sólido-líquido la suposición de deslizamiento nulo ("No Slip"). Por ello, esta suposición se ha implementado en la condición de contorno de "Muro", obligando a que todas las componentes de la velocidad del fluido en la superficie con dicha condición de contorno se anulen.



En el caso de superficies que no estén en contacto con el interfaz sólido-líquido y que no coincidan con ningún plano de simetría del modelo, se ha usado como condición de contorno un "Abierto". En todas estas superficies, se ha especificado una presión relativa de 0 Pa. La elección de la condición de contorno "Abierto" viene determinada por la imposibilidad de definir alguna de las fronteras del dominio de la simulación como entrada o salida, ya que la principal fuente de flujo es la superficie oscilante que actúa como interfaz sólido-líquido. Así, la dirección del flujo en las fronteras del modelo variará de dirección con el tiempo.

En los diferentes modelos generados en los que se ha tenido en cuenta la periodicidad de la estructura superficial rugosa, se han modelado las fronteras coincidentes con los planos de simetría con condiciones de contorno de "Plano Periódico" (ver apéndice de FVM).

La combinación adecuada de todas o varias de estas condiciones de contorno en un mismo modelo ha resultado ser estable, asegurando la convergencia de las simulaciones.

### **7.2.6 Estado inicial**

Los valores iniciales para todas las variables implicadas en la simulación deben ser especificados previamente. La convergencia de la simulación es mucho más rápida si los valores iniciales especificados son los adecuados. En el caso de una simulación transitoria, como la que se lleva a cabo en este trabajo de investigación, es posible realizar una simulación previa de carácter estacionario con el fin de calcular estas condiciones iniciales.

En todas las simulaciones realizadas en esta tesis, el estado inicial de la velocidad en todas sus componentes es 0. Asimismo, el valor inicial de la presión es también 0.

### **7.2.7 Convergencia**

En las simulaciones realizadas en este trabajo, se han especificado unos criterios de convergencia que garanticen la precisión de las soluciones. Se ha indicado un umbral para el valor cuadrático medio (RMS "Root Mean Square") del residuo de convergencia de  $10^{-5}$ . Este valor se corresponde con la máxima diferencia permitida entre el resultado de dos interacciones consecutivas para considerar que la solución ha convergido de manera adecuada.

### 7.2.8 Cálculo de resultados

En todas las simulaciones realizadas en este trabajo de investigación, la magnitud fundamental que se pretende hallar es la impedancia acústica en el interfaz sólido-líquido. Para obtenerla, el primer paso es conocer la fuerza de arrastre en la dirección del movimiento.

En el caso de una superficie plana, la fuerza de arrastre coincide con la tensión de cizalla en el interfaz ('Wall Shear Stress' en la bibliografía anglosajona) debida a los efectos viscosos del líquido. Para obtener esta cantidad en el modelo numérico de volúmenes finitos generado, se integra, para todos los nodos en el área correspondiente al interfaz sólido-líquido, el valor del 'Wall Shear Stress' calculado por Ansys.

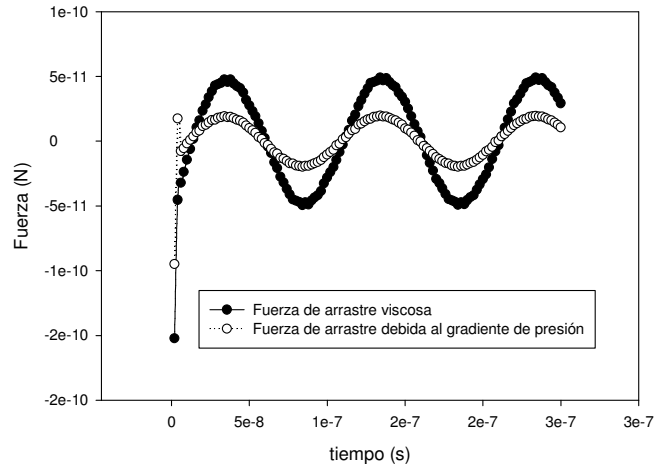
En el caso de una superficie no plana los efectos de los gradientes de presión aparecen, y se deben tener en cuenta para el cálculo de la fuerza de arrastre. Así, se deben sumar a los efectos del rozamiento viscoso con el fin de obtener la fuerza de arrastre total. Para calcular la fuerza de arrastre en la dirección del movimiento debida a los efectos de presión, se integra ésta sobre el área proyectada de la superficie del interfaz sólido-líquido sobre el plano perpendicular a la dirección del movimiento.

Como se puede observar en la Figura 7.1, la fuerza de arrastre viscosa y la fuerza de arrastre debida al gradiente de presiones son del mismo orden de magnitud. Usualmente las fuerzas viscosas son mayores, aunque si la proporción de superficie rugosa aumenta mucho con respecto a la superficie plana la amplitud de la fuerza de presión puede ser mayor.

En la Figura 7.1 también se observa que ambas componentes de la fuerza están ligeramente desfasadas. Asimismo, se observa que en los primeros instantes de la simulación se producen unos picos en los resultados. Este efecto transitorio es típico de este tipo de simulaciones.

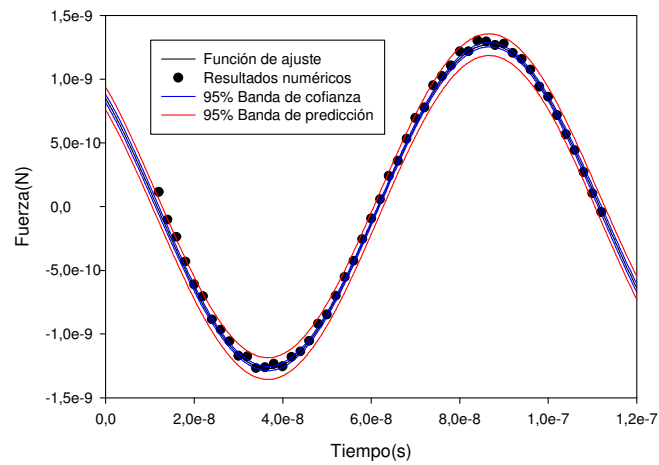
Una vez obtenidos los valores de la fuerza de arrastre en cada instante de tiempo, se eliminan los transitorios y se calcula la impedancia acústica. Para ello es necesario conocer el módulo y la fase de la fuerza y de la velocidad. A partir de una regresión no-lineal se ajustan los resultados numéricos a una curva sinusoidal como se muestra en la Figura 7.2 [Navidi06].

Este procedimiento estadístico de ajuste se realizará a partir de ahora en todas las simulaciones de este trabajo de investigación con el fin de obtener un valor numérico para el módulo y la fase de la fuerza de arrastre. A partir de estos valores es sencillo calcular la impedancia acústica mediante la expresión (1.15) descrita en la introducción.



**Figura 7.1.** Evolución temporal de la fuerza de arrastre viscosa y la fuerza de arrastre debida al gradiente de presión para el caso de una superficie oscilante de casquetes de radio 200 nm separados 800 nm.

#### Ajuste Resultados Numéricos



**Figura 7.2.** Procedimiento de ajuste de los resultados experimentales para obtener el módulo y la fase de la fuerza de arrastre.

### 7.3 Superficie plana

Con el fin de validar la metodología de modelado y la exactitud del método numérico de los volúmenes finitos, se ha procedido a simular en primer lugar el comportamiento de una superficie plana oscilante en contacto con un medio líquido (agua) y comparar los resultados obtenidos con la teoría esperada [Landau91].

La fuerza de arrastre en una superficie plana oscilando en un medio líquido viene determinada por la ecuación (7.2) [Landau91]:

$$F_{\text{arrastre}} = Av \frac{\rho\omega}{2} \delta + jAv \frac{\rho\omega}{2} \delta \quad (7.2)$$

donde  $A$  corresponde al área de la superficie plana,  $v$  a la velocidad de desplazamiento y  $f$  a la frecuencia de oscilación.

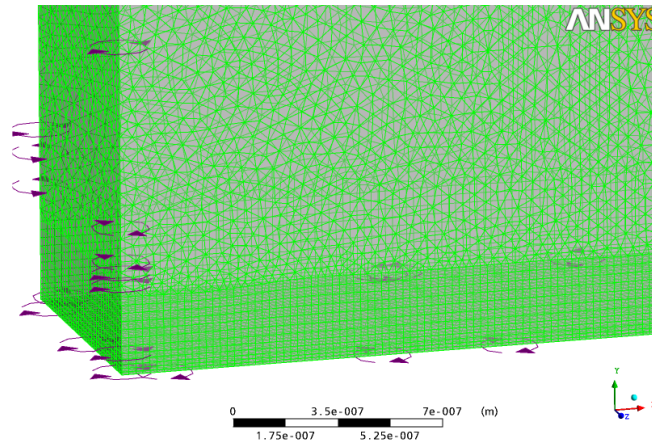
Para modelar la región del fluido se ha generado un cubo de dimensiones  $3 \mu\text{m}$  de alto,  $1 \mu\text{m}$  de ancho y  $2 \mu\text{m}$  de largo. Posteriormente se ha mallado este dominio usando el algoritmo de Delaunay para mallar las superficies externas, y el algoritmo "Advancing Front" para la malla volumétrica interior (ver apéndice D). Se ha escogido un tamaño máximo de elemento volumétrico de  $50 \text{ nm}$ . Asimismo, se ha incluido la opción de "inflación" para la superficie que representa el interfaz sólido-líquido con el fin de obtener una buena resolución en la dirección de penetración de la onda de cizalla que la teoría predice. Se ha escogido un espesor de  $10 \text{ nm}$  para la primera capa de elementos "inflacionarios", hasta completar un total de 12 capas. El factor de expansión escogido es 1.2. El diseño geométrico realizado así como el mallado puede apreciarse en la Figura 7.3.

Se ha realizado una simulación transitoria con un paso temporal de  $2 \text{ ns}$ . La duración total de la simulación ha sido de  $0.25 \mu\text{s}$ . Se han escogido los valores de  $\rho=997 \text{ Kg}\cdot\text{m}^{-3}$  para la densidad y de  $\eta=8.899\cdot 10^{-4} \text{ kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$  para la viscosidad del agua, suponiendo un medio incompresible y no dependiente de la temperatura.

Se ha escogido un modelo de flujo laminar tal y como se predice en la teoría [Martin93-1]. Se ha empleado el método de "aproximación de alta resolución" para la discretización del término de advección. Se ha escogido el método de "aproximación de segundo orden de Euler" para la discretización del término transitorio (ver apéndice de FVM).

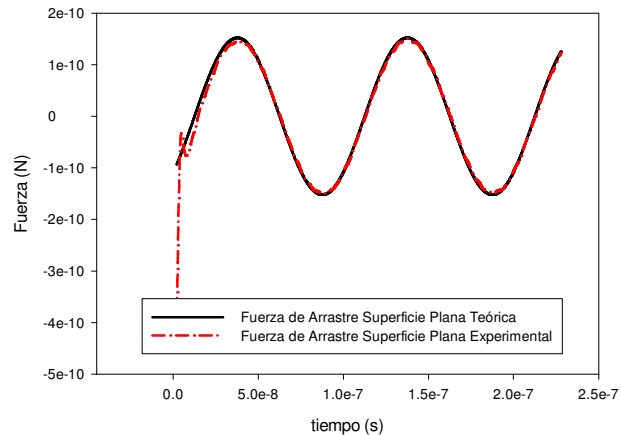
Se ha supuesto que todas las componentes de velocidad y presión son 0 en el instante  $t=0$ . Se ha escogido la condición de contorno de "muro móvil sin deslizamiento" para el interfaz sólido- líquido. El desplazamiento de esta superficie viene determinado por la ecuación (7.1). Para el resto de

superficies del modelo se ha escogido la condición de contorno "Abierto". Se ha especificado un valor máximo del valor cuadrático medio del residuo de convergencia de  $10^{-5}$ .



**Figura 7.3.** Detalle del mallado de la región generada para modelar el comportamiento de un sólido pulido oscilando en un medio líquido.

Una vez realizada la simulación, se ha procedido a analizar los resultados de la misma. El primer paso ha sido comparar la fuerza de arrastre de una superficie plana teórica descrita por la ecuación (7.2), con la fuerza de arrastre obtenida en el procesado numérico. Esta comparación puede verse gráficamente en la Figura 7.4.

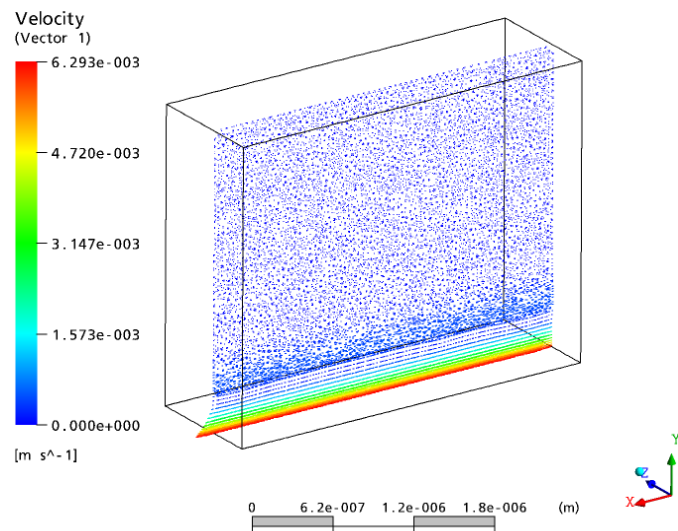


**Figura 7.4.** Comparación entre la fuerza de arrastre que sufre una superficie plana oscilante calculada numéricamente por el método de los volúmenes finitos (roja) y la fuerza de arrastre teórica (negra) [Landau91]

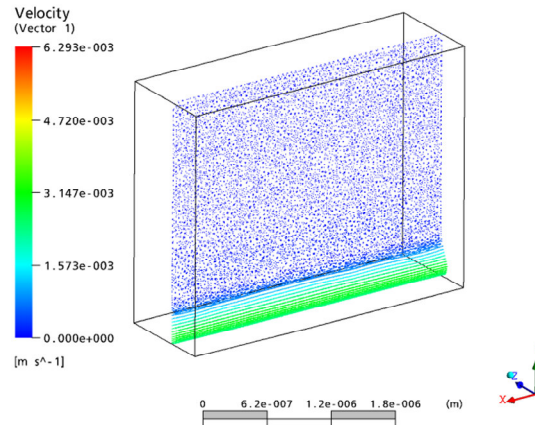
Puede apreciarse, que salvo en los primeros instantes de simulación (hasta aproximadamente  $t = 20$  ns), donde se produce un transitorio en la fuerza de arrastre numérica, los resultados teóricos y numéricos coinciden. Así, se obtienen los primeros indicios positivos sobre las bondades del método numérico escogido, así como del proceso de modelado realizado para abordar el problema rugoso.

En la Figura 7.5 se puede observar una representación vectorial de la velocidad en el fluido en el instante  $t = 50$  ns sobre el plano  $z = 0$ . Los colores azules representan velocidades bajas, mientras que los colores rojos representan velocidades altas. La superficie inferior del modelo, representa el interfaz sólido-líquido. Se puede apreciar que la velocidad del fluido está dirigida en la dirección del eje X como se ha comentado en el epígrafe 6.1.5. El valor del módulo de la velocidad coincide con el esperado, que se puede obtener fácilmente derivando la expresión de la ecuación (7.1). La velocidad es máxima en el interfaz, y va perdiendo amplitud conforme penetra en el medio líquido.

En la Figura 7.6 observamos la misma simulación en el instante  $t = 80$  ns. Es posible observar que la amplitud de la velocidad en el fluido próximo al interfaz sólido-líquido ha disminuido debido a que se trata de un movimiento oscilatorio.

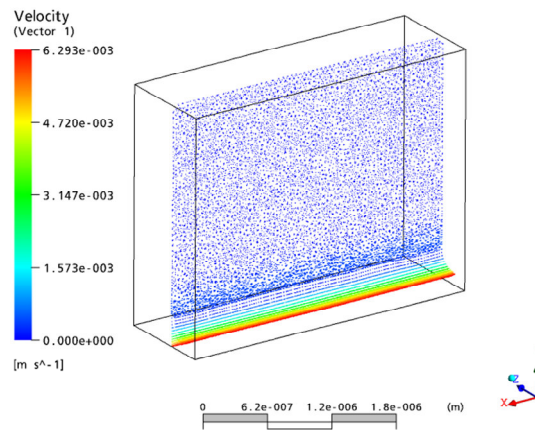


**Figura 7.5.** Representación de la solución de una superficie plana oscilante en el instante  $t = 50$  ns. Vector velocidad en el plano  $z = 0$



**Figura 7.6.** Representación de la solución de una superficie plana oscilante en el instante  $t=80\text{ns}$ . Vector velocidad en el plano  $z=0$

En la Figura 7.7 se aprecia la distribución de velocidades en el fluido para el instante  $t=100\text{ ns}$ . Se hace notar que el módulo de la velocidad es idéntico al del instante  $t=50\text{ ns}$  (Figura 7.5) pero su sentido se invierte debido, otra vez, al carácter oscilatorio del movimiento en el interfaz sólido-líquido.



**Figura 7.7.** Representación de la solución de una superficie plana oscilante en el instante  $t=100\text{ns}$ . Vector velocidad en el plano  $z=0$

## 7.4 Esfera aislada

Una vez comprobada, en el epígrafe anterior, la validez del método de los volúmenes finitos para modelar fenómenos de interfaz sólido-líquido, trataremos en este apartado del trabajo de estudiar la efectividad del método y del procedimiento de modelado para el caso de superficies más complejas donde adquieren importancia las componentes de la fuerza de arrastre generadas por el gradiente de presiones como se explicó en el epígrafe 7.2.8. Estas componentes tienen un papel muy importante en los fenómenos rugosos.

Se procede a modelar una esfera oscilante en un medio fluido, en este caso el agua. Para comprobar el efecto que tiene la variación de las dimensiones rugosas en la precisión del modelo numérico, se realizarán simulaciones con esferas de diferentes radios. Los radios variarán desde 10 nm hasta 500 nm, valores típicos de dimensiones rugosas reales [Rechendorff07, Bund02, Bund04].

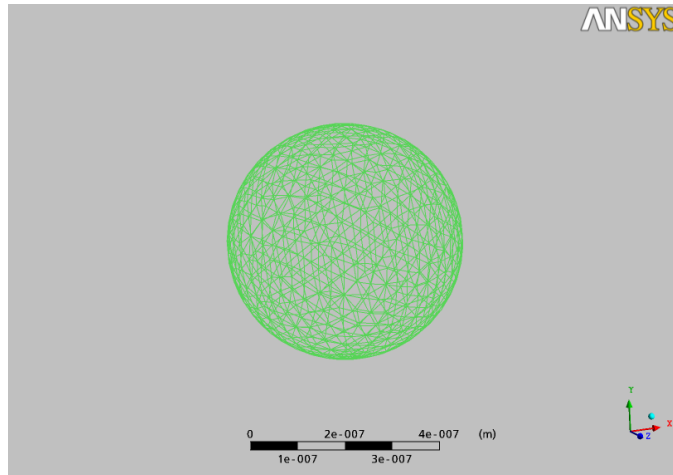
Se comparará la fuerza de arrastre obtenida numéricamente con la fuerza de arrastre teórica descrita en la ecuación (7.3)[Landau91] para cada uno de los diferentes radios.

$$F_{arrastre} = 6\pi\eta R\left(1 + \frac{R}{\delta}\right)v + j3\pi R^2 \sqrt{\frac{2\eta\rho}{\omega}} \left(1 + \frac{2R}{9\delta}\right)a \quad (7.3)$$

donde  $R$  corresponde al radio de la esfera,  $\omega$  a la pulsación de oscilación y  $a$  a la aceleración de la esfera.

Para modelar la región del fluido se ha generado un cubo de dimensiones variables en función del radio de la esfera modelada. Estas dimensiones se han escogido de tal manera que el lado de dicho cubo sea 10 veces mayor que la esfera, con el fin de evitar los efectos de bordes en los resultados de la simulación. Posteriormente, se ha mallado este dominio usando el algoritmo de Delaunay para discretizar las superficies externas y el algoritmo "Advancing Front" para la malla volumétrica interior (ver apéndice de FVM). Se ha escogido un tamaño máximo de elemento volumétrico de 50 nm. Asimismo, se ha incluido la opción de "inflación" para la superficie que representa el interfaz sólido-líquido con el fin de obtener una buena resolución en la dirección de penetración de la onda de cizalla que la teoría predice. Se ha escogido un espesor de 10 nm para la primera capa de elementos "inflacionarios", hasta completar un total de 12 capas. El factor de expansión escogido es 1.2. El diseño geométrico realizado así como el mallado puede apreciarse en la Figura 7.8.





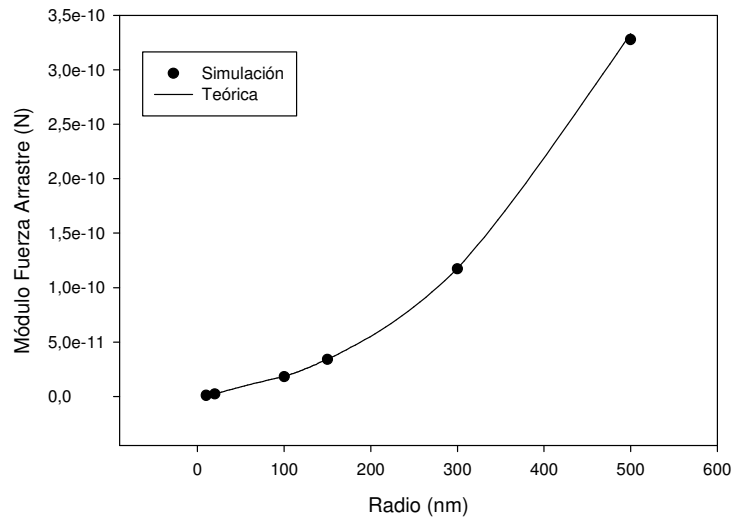
**Figura 7.8.** Detalle del mallado de la región generada para modelar el comportamiento de una esfera oscilante de radio 200 nm en un medio líquido.

Se ha realizado una simulación transitoria con un paso temporal de 2 ns. La duración total de la simulación ha sido de 0.25  $\mu\text{s}$ . Se han escogido los valores de  $\rho=997 \text{ Kg}\cdot\text{m}^{-3}$  para la densidad y de  $\eta=8.899\cdot 10^{-4} \text{ kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$  para la viscosidad del agua, suponiendo por tanto un medio incompresible y no dependiente de la temperatura.

Se ha escogido un modelo de flujo laminar tal y como se predice en la teoría [Martin93-1]. Se ha empleado el método de "aproximación de alta resolución" para la discretización del término de advección. Se ha escogido el método de "aproximación de segundo orden de Euler" para la discretización del término transitorio (ver apéndice D).

Se ha supuesto que todas las componentes de velocidad y presión son nulas en el instante  $t=0$ . Se ha escogido la condición de contorno de "muro móvil sin deslizamiento" para el interfaz sólido-líquido que en este caso coincide con la superficie de la esfera. El desplazamiento de esta superficie viene determinado por la ecuación (7.1). Para el resto de superficies del modelo se ha escogido la condición de contorno "Abierto". Se ha especificado un valor máximo del valor cuadrático medio del residuo de convergencia de  $10^{-5}$ .

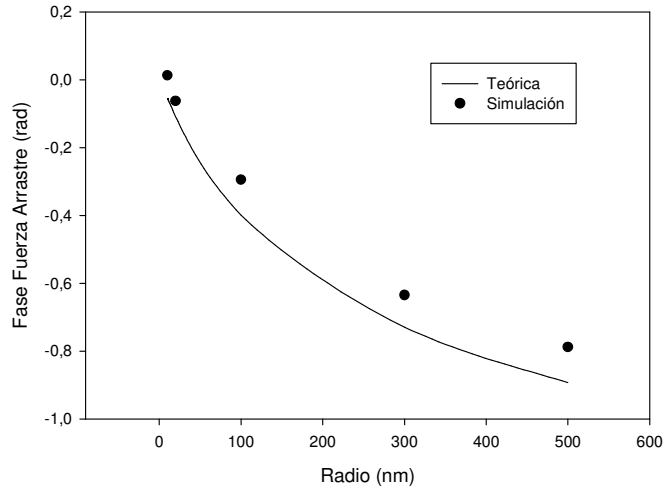
En la Figura 7.9 se observa el módulo de la fuerza de arrastre en función del radio de la esfera simulada. Como se puede apreciar, los valores teóricos y numéricos son similares.



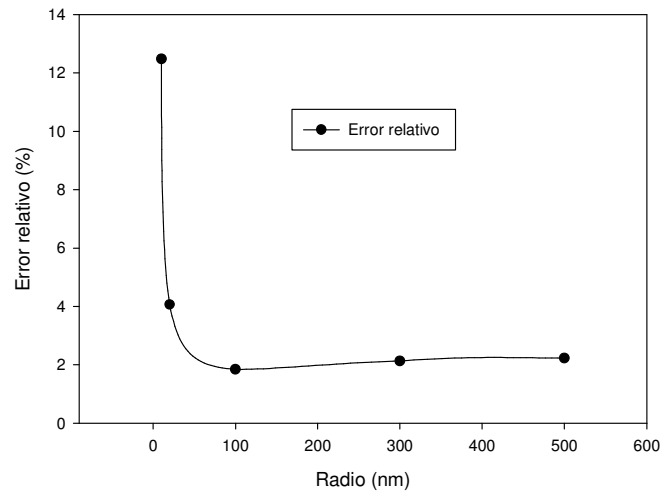
**Figura 7.9.** Comparación entre el módulo de la fuerza de arrastre teórica en una esfera oscilante en un medio y la simulación para diferentes radios de la esfera.

En la Figura 7.10 se representan tanto los valores teóricos como numéricos de la fase de la fuerza de arrastre en función del radio de la esfera simulada. Se puede observar que los valores teóricos y numéricos se corresponden pero que difieren ligeramente para radios grandes. Esta discrepancia carece de importancia en las simulaciones posteriores de este trabajo, puesto que para el cálculo de la parte real e imaginaria de la impedancia acústica se utilizan variaciones de fase entre la fuerza y la velocidad. Estas diferencias de fase eliminan el error absoluto de fase que se muestra en la Figura 7.10.

En la Figura 7.11 se representa el error relativo entre el módulo de la fuerza de arrastre teórica y la calculada numéricamente. Se aprecia que el error es máximo cuando el radio de la esfera modelada es mínimo. Este efecto se debe a la resolución angular de los elementos usados para el mallado. Cuando la esfera es tan pequeña, el error de discretización crece. A pesar de ello, en el peor de los casos el error alcanza un 12%, discrepancia asumible. En la mayoría de los casos este error se sitúa entorno al 2%.



**Figura 7.10.** Comparación de la fase de la fuerza de arrastre en una esfera oscilante en un medio líquido teórica con la simulación para diferentes radios de la esfera.



**Figura 7.11.** Error relativo cometido en el módulo de la fuerza de arrastre de una esfera oscilante en agua con respecto al valor teórico esperado

Tras el estudio de estos resultados, y su posterior comparación con los teóricos esperados, se concluye que tanto el procedimiento de modelado como el método numérico escogido, son adecuados para simular el comportamiento de superficies rugosas complejas.

## 7.5 Superficie de casquetes

Una vez comprobada la validez del método numérico para modelar superficies rugosas complejas, se procede a diseñar un conjunto de simulaciones que permitan estudiar en profundidad el proceso de interferencia entre casquetes que no se tiene en cuenta en el modelo original de Arnau.

El objetivo final es el de estudiar como influye el tamaño de la rugosidad y su distribución y longitud de correlación en la impedancia acústica de una superficie oscilante en contacto con un medio líquido. La comprensión del fenómeno de interferencia, gracias al estudio de los resultados numéricos, junto con la interpretación del desarrollo matemático planteado en la parte 3 de la aportación de este trabajo permitirán proponer una corrección para el modelo original de Arnau.

Para ello, se generan diferentes modelos en los que se incluyen 3 casquetes semi-esféricos en un interfaz sólido-líquido plano. Como se detalla posteriormente, el modelo tiene forma cúbica. La razón tiene que ver con la naturaleza misma del método de los volúmenes finitos. Es mucho más factible conseguir la convergencia de la simulación en un dominio cúbico con condiciones de contorno robustas (ver apéndice D). La distribución original que plantea Arnau para los casquetes en la superficie plana viene determinada por una malla de hexágonos de apotema  $a_r$  (ver epígrafe 1.5.4). Esta distribución no se puede plasmar de manera práctica en el modelo de volúmenes finitos. Por ello, se sustituye el parámetro  $a_r$  por otro equivalente,  $d$ , que representa la distancia entre los centros de los casquetes esféricos.

El incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana,  $\Delta S_r$ , y el volumen rugoso por unidad de superficie plana,  $V_r$ , que son los parámetros básicos del modelo de Arnau, vienen determinados por  $a_r$ . En las simulaciones realizadas, estos parámetros se calculan geoméricamente sobre el modelo numérico al igual que la superficie plana,  $S_g$ .

Por simplicidad, en todas estas simulaciones se considera que el radio y la altura de los casquetes coincide ( $h_r=r_r$  en el modelo de Arnau).

Para reproducir lo más fielmente posible el caso real, en el que existen una cantidad muy elevada de casquetes, se utilizan condiciones de contorno armónicas. Si bien en un mismo modelo el radio de todos los casquetes es igual, se realizan diferentes modelos con casquetes de radio: 50 nm, 100 nm, 200 nm, 300 nm y 500 nm. Asimismo, se generan diferentes modelos para un mismo radio de casquete, en los que se varía la distancia entre casquetes.

Para modelar la región del fluido se ha generado un cubo de dimensiones variables en función de la distancia que debería existir entre casquetes. Así, para conseguir el efecto de interferencia en todas las direcciones del plano del interfaz sólido-líquido, se ha sometido a las superficies limitantes del modelo en las direcciones  $x$  y  $z$ , a una condición de contorno de 'Plano periódico' (ver apéndice D). Se han situado estas superficies limitantes a una distancia del centro del casquete más próximo igual a la mitad de distancia existente entre dos casquetes vecinos. De esta manera, el efecto de periodicidad introducido por las condiciones de contorno 'Plano periódico' emula perfectamente un array de casquetes uniformemente distribuidos. Se ha escogido la condición de contorno de "muro móvil sin deslizamiento" para el interfaz sólido-líquido que en este caso está situado en el eje  $y=0$ . El desplazamiento de esta superficie viene determinado por la ecuación (7.1). Para la superficie superior del modelo se ha escogido la condición de contorno "Abierto". Posteriormente, se ha mallado este dominio usando el algoritmo de Delaunay para discretizar las superficies externas y el algoritmo "Advancing Front" para la malla volumétrica interior (ver apéndice D). Se ha escogido un tamaño máximo de elemento volumétrico de 50 nm. Asimismo, se ha incluido la opción de "inflación" para la superficie que representa el interfaz sólido-líquido con el fin de obtener una buena resolución en la dirección de penetración de la onda de cizalla que la teoría predice. Se ha escogido un espesor de 10 nm para la primera capa de elementos "inflacionarios", hasta completar un total de 12 capas. El factor de expansión escogido es 1.2.

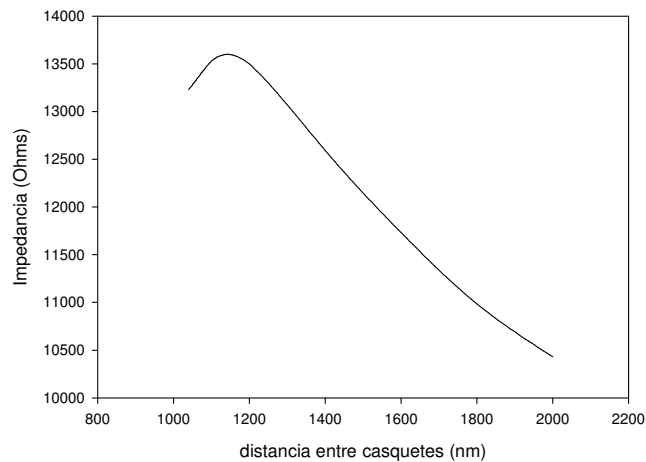
Se ha realizado una simulación transitoria con un paso temporal de 2 ns. La duración total de la simulación ha sido de 0.25  $\mu\text{s}$ . Se han escogido los valores de  $\rho=997 \text{ Kg}\cdot\text{m}^{-3}$  para la densidad y de  $\eta=8.899\cdot 10^{-4} \text{ kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$  para la viscosidad del agua, suponiendo por tanto un medio incompresible y no dependiente de la temperatura.

Se ha escogido un modelo de flujo laminar tal y como se predice en la teoría [Martin93-1]. Se ha empleado el método de "*aproximación de alta resolución*" para la discretización del término de advección. Se ha escogido el método de "*aproximación de segundo orden de Euler*" para la discretización del término transitorio (ver apéndice D).

Se ha supuesto que todas las componentes de velocidad y presión son nulas en el instante  $t=0$ . Se ha especificado un valor máximo del valor cuadrático medio del residuo de convergencia de  $10^{-5}$ .

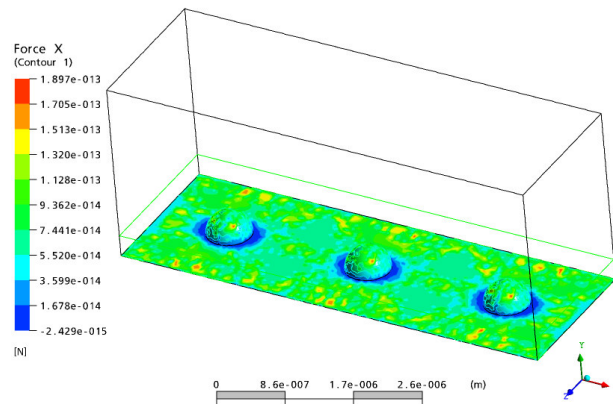
### 7.5.1 Interpretación física del efecto de interferencia entre casquetes

El estudio del efecto de interferencia entre casquetes proporcionará una mayor comprensión del fenómeno rugoso y permitirá avanzar en el desarrollo de una corrección para el modelo de Arnau simple. Si analizamos los resultados de las simulaciones para, por ejemplo,  $r=500$  nm, es posible apreciar claramente el efecto de dichas interferencias. En la Figura 7.12 se representa la interpolación de los resultados de las simulaciones para el módulo de la impedancia en función de la distancia entre casquetes. Se observa que, en general, cuando la distancia entre casquetes vecinos disminuye, la impedancia acústica aumenta debido al incremento de superficie rugosa en relación con la plana, tal y como se describe en la bibliografía [Rechendorff07]. Sin embargo, si la distancia entre los casquetes se reduce mucho, se produce un descenso en el valor del módulo de la impedancia (distancias entre casquetes de 1200 a 1000 nm). Este fenómeno se debe a la disminución de la fuerza de arrastre a la que se ven sometidos los casquetes cuando están muy próximos entre sí. Una de las causas es que el empuje que realiza el fluido sobre la proyección de la superficie del interfaz sólido-líquido perpendicular a la dirección del movimiento (fuerza del gradiente de presiones) también se reduce. Esta disminución es consecuencia de la alteración de la distribución del campo de velocidades en el fluido por parte de los casquetes colindantes.



**Figura 7.12.** Representación del módulo de la impedancia acústica para el caso de casquetes semi-esféricos con radio 500 nm en función de la distancia de separación entre sus centros.

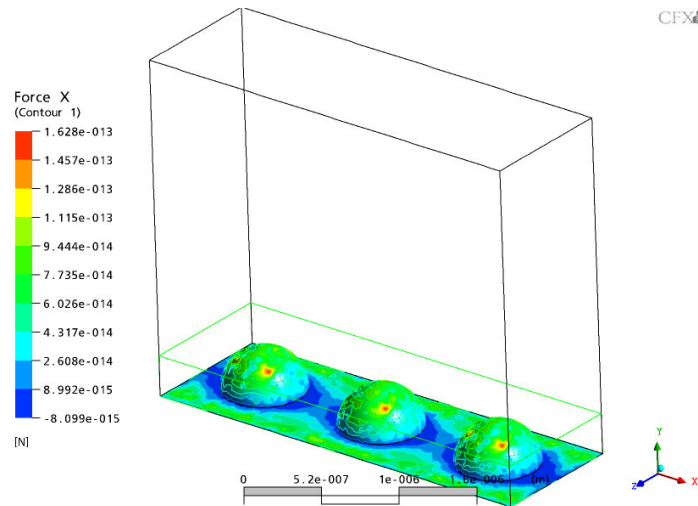
Si se analiza la distribución geométrica de la fuerza de arrastre en la dirección del movimiento en un instante de tiempo determinado, también se pueden extraer conclusiones interesantes. En la Figura 7.13 es posible observar la componente X de la fuerza total de arrastre para casquetes de radio 300 nm en el instante  $t=50$  ns de la simulación, cuando la distancia entre casquetes es de 2000 nm. En esta figura se muestran solamente tres casquetes, pero en las superficies límites del modelo se han aplicado condiciones de contorno armónicas de manera que el resultado corresponde a una matriz infinita de casquetes. En esta simulación, las interacciones entre casquetes vecinos son mínimas. Se aprecia que alrededor de las semi-esferas existe una disminución de la fuerza de arrastre considerable. Este efecto se debe a que la inclusión de esferoides en el interfaz sólido-líquido originalmente plano genera flujo no paralelo a la dirección de oscilación. Por lo tanto, este flujo no se opone al movimiento en la proximidad de los casquetes y la fuerza de arrastre en estas zonas se hace incluso negativa (estas zonas se marcan en azul y si se observa la barra de equivalencia de colores corresponde con un valor de  $-2,429 \cdot 10^{-15}$  N) reduciéndose la fuerza de arrastre total media de la superficie.



**Figura 7.13.** Representación de la fuerza de arrastre para una superficie plana con inclusiones de casquetes de radio 300 nm y distancia de separación 2000 nm en el instante  $t=50$  ns

En la Figura 7.14 se representa otra simulación con las mismas condiciones que las de la Figura 7.13, a excepción de la distancia entre casquetes. En este caso esa distancia es de 1000 nm. Es posible observar que, en este caso, las regiones de flujo perpendicular a la dirección del movimiento que circundan a los casquetes han llegado a enlazarse debido

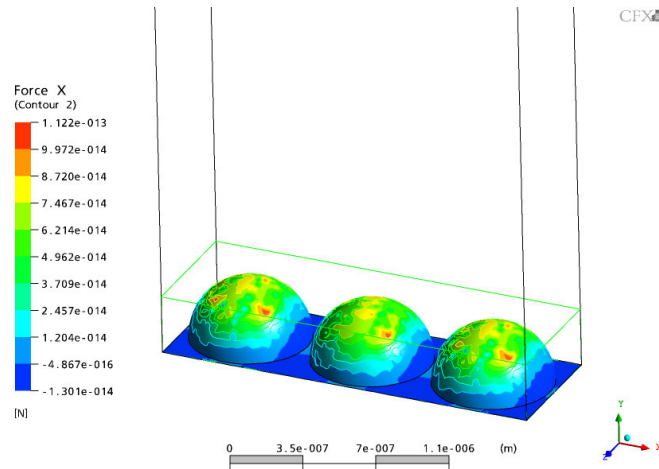
a la mayor proximidad entre ellas. Asimismo, si nos fijamos en la escala de colores de la izquierda que representa la magnitud de la fuerza de arrastre, se aprecia una disminución en su valor con respecto a la Figura 7.13 (si se observan las barras de equivalencia de colores, se pasa de un valor de fuerza de arrastre en los casquetes de  $9,362 \cdot 10^{-14}$  N a  $7,735 \cdot 10^{-14}$  N) debida al efecto de reducción del empuje del fluido comentado anteriormente.



**Figura 7.14.** Representación de la fuerza de arrastre para una superficie plana con inclusiones de casquetes de radio 300 nm y distancia de separación 1000 nm en el instante  $t=50$  ns

En la Figura 7.15 se representa el caso en el que la separación entre los casquetes es mínima, de 640 nm. Los efectos del flujo no paralelo a la dirección del movimiento son máximos y las regiones que circundan a los casquetes se solapan ocupando toda la superficie plana. Si se observan las magnitudes de la barra de colores de la izquierda, se deduce que la fuerza de arrastre a la que se ve sometida la parte superior de los casquetes ha disminuido. Se hace notar que la magnitud relativa a los colores azules corresponde a un 10% del máximo de la fuerza de arrastre cambiado de signo. Este porcentaje ha aumentado progresivamente conforme se ha reducido la distancia entre los casquetes. En la Figura 7.13 este porcentaje es de menos del 1% y equivale a una fuerza de arrastre nula. Parece que al aproximarse los casquetes cada vez más, se genera una fuerza de sentido contrario a la que se produce en el caso de una superficie plana, debida al efecto interferente de la nueva geometría.



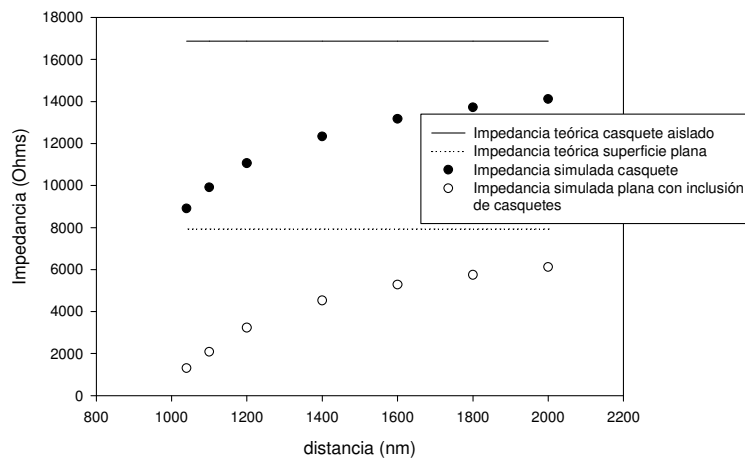


**Figura 7.15.** Representación de la fuerza de arrastre para una superficie plana con inclusiones de casquetes de radio 300 nm y distancia de separación 640 nm en el instante  $t=50$  ns

El análisis de los resultados mediante el software ANSYS © permite realizar cálculos de la fuerza de arrastre a la que se ven sometidas diferentes zonas de la superficie por separado. Si representamos las impedancias acústicas obtenidas en las simulaciones para radios de casquete de 500 nm debidas bien a la parte rugosa o bien a la parte plana de la superficie del interfaz sólido-líquido separadamente, junto con sus correspondientes valores teóricos en el caso de ausencia de interferencias (es decir, una superficie plana de Kanazawa para el caso de la parte plana de la superficie y un casquete esférico aislado para la parte rugosa) obtenemos la Figura 7.16.

En la Figura 7.16 se aprecia que cuando la distancia entre casquetes es grande, los valores de impedancia tienden a los teóricos esperados en el caso de ausencia de interferencias, como es lógico. Sin embargo, cuando la distancia disminuye, los efectos de las interferencias hacen disminuir el valor de impedancia alejándose de la superficie plana de Kanazawa para el caso de la parte plana de la superficie y del casquete aislado para la parte rugosa. Esto era esperable en el caso de la impedancia debida a los casquetes, puesto que la bibliografía referencia un descenso en la fuerza de arrastre en el caso de arrays de esferas [Hasimoto59, Cheng97, Nitsche89] que es equivalente a este problema. Sin embargo, en el caso de la impedancia debida a la superficie plana aparece un efecto similar que no se había tenido en cuenta en el desarrollo matemático en la parte 3 de la

aportación de este trabajo de investigación. En esa parte, se había considerado el efecto de interferencias entre casquetes, pero luego se había supuesto que estas interferencias no afectaban a la contribución de la parte plana en la impedancia acústica. Tratar de considerar ese efecto en el modelo matemático resultaría en un desarrollo de una complejidad inabordable. Tras las simulaciones numéricas realizadas en este epígrafe se puede concluir que la fenomenología que tiene lugar en el interfaz sólido-líquido rugoso es variada y compleja. Resultaría muy dificultoso llegar a un modelo puramente matemático para la impedancia acústica rugosa.



**Figura 7.16.** Representación del efecto de las interferencias entre casquetes en las impedancias relativas planas y rugosas para una superficie de casquetes de radio 500 nm.

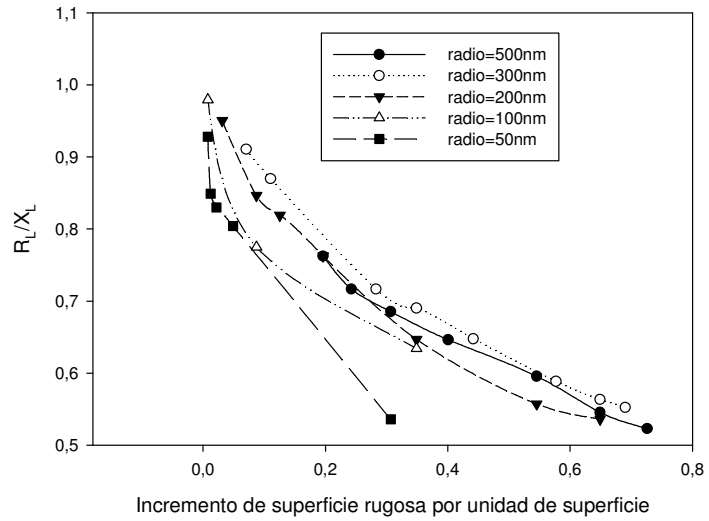
#### 7.4.2 Identificación de los parámetros físicos geométricos más influyentes en la respuesta rugosa del sensor

Una vez investigados los fenómenos físicos que se producen en el caso de una superficie plana con la inclusión de un conjunto de casquetes semi-esféricos uniformemente distribuidos que oscila en un medio líquido, se trata de identificar los parámetros geométricos que permiten caracterizar la respuesta de esta superficie rugosa desde el punto de vista de la impedancia acústica superficial. Tanto Daikhin y Urbakh como Etchenique proponen como parámetros en sus modelos de la rugosidad superficial 'fuerte' del sensor de cuarzo los más conocidos y utilizados hasta la fecha: el valor cuadrático medio de la dimensión vertical de las inhomogeneidades,  $L_r$ , y la longitud de correlación horizontal  $\xi$ . En

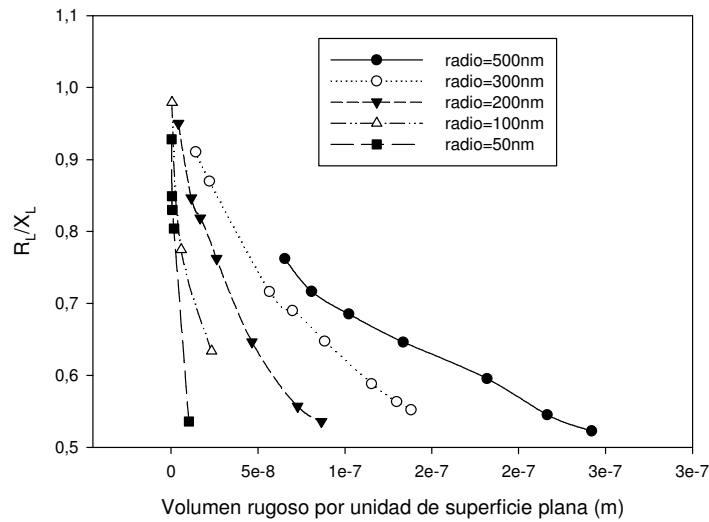
cambio, en el modelo de rugosidad de Arnau se utilizan 3 parámetros: la dimensión vertical de los casquetes  $h_r$ , su radio  $r_r$ , y la apotema del hexágono donde están inscritos  $a_r$ . En la parte 1 de la aportación de este trabajo de investigación (epígrafe 1.1) se han descrito las relaciones entre los parámetros de los modelos de Daikhin, Urbakh y Etchenique y los parámetros del modelo de Arnau. Parece necesario evaluar qué parámetros resultan más efectivos para caracterizar la rugosidad superficial. Para ello, seguidamente se estudiarán las relaciones existentes entre los cuatro parámetros más representativos de la impedancia acústica superficial: la parte real de la impedancia, la parte imaginaria, el módulo de la impedancia y la relación  $R_I/X_L$ ; y cuatro parámetros geométricos que caracterizan la superficie rugosa: el valor cuadrático medio de la altura de la superficie de casquetes, la distancia entre casquetes, el volumen rugoso por unidad de superficie plana y el incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana.

La relación  $R_I/X_L$  se utiliza en la mayoría de las publicaciones sobre el efecto rugoso para evaluar su influencia en la respuesta del cristal resonador de cuarzo. Recuérdese que para una superficie plana esta relación tiene un valor de 1. Conforme el fenómeno rugoso se hace más importante, el valor de  $R_I/X_L$  decrece. A continuación representaremos esta relación en función de distintos parámetros geométricos. En la Figura 7.17 se representa  $R_I/X_L$  en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana,  $\Delta S_r$ . En esta representación es posible apreciar que valores reducidos de  $\Delta S_r$  están asociados a valores de  $R_I/X_L$  próximos a la unidad. Asimismo, se observa que las curvas que resultan para un radio de casquete superior a la profundidad de penetración de la onda acústica en el medio (radios de 500 nm, 300 nm y 200nm) son muy similares. Se hace notar que la representación de  $R_I/X_L$  en función de  $\Delta S_r$  se puede considerar como una buena caracterización del efecto rugoso para  $r > \delta$ , puesto que el efecto de la variable radio del casquete es reducido y parece factible obtener un único valor de  $\Delta S_r$  a partir de una medida de  $R_I/X_L$ .

En la Figura 7. 18 se representa la relación  $R_I/X_L$  en función de el volumen rugoso por unidad de superficie plana,  $V_r$ . En esta representación es posible apreciar que un incremento en el valor de  $V_r$  produce una disminución en  $R_I/X_L$  como cabría esperar. El comportamiento de las diferentes curvas que relacionan  $R_I/X_L$  con  $V_r$  parece muy dependiente del radio del casquete, por lo que no se puede considerar esta representación como óptima para caracterizar el efecto rugoso. En el caso de  $r=50$  nm, valores muy parecidos de  $V_r$  generan valores muy distintos de  $R_I/X_L$ . Este hecho nos lleva a pensar que para volúmenes rugosos reducidos, la influencia de éstos en la relación  $R_I/X_L$  es mínima.

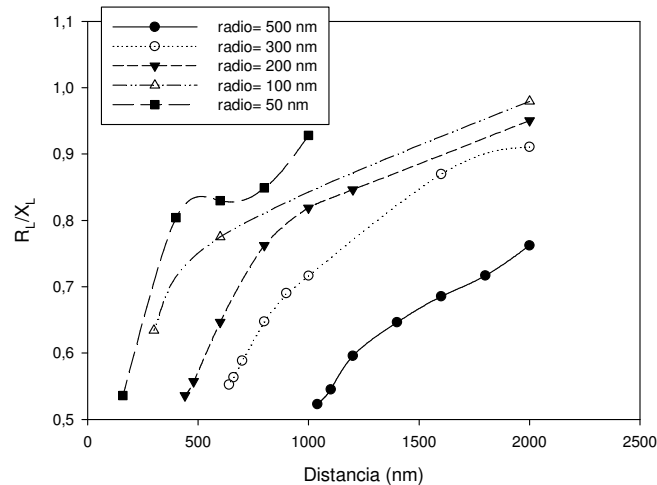


**Figura 7.17.** Representación de la relación  $R_L/X_L$  en función de la variación de superficie rugosa por unidad de superficie plana



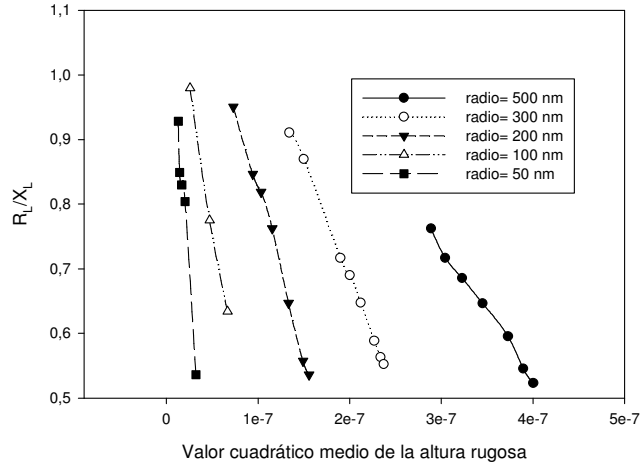
**Figura 7.18.** Representación de la relación  $R_L/X_L$  en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana

En la Figura 7.19 se representa la relación  $R_L/X_L$  en función de la distancia entre los centros de los casquetes, que es una magnitud equivalente en nuestro caso a la longitud de correlación utilizada por Daikhin, Urbakh y Etchenique. Se puede observar que cuanto mayor es la distancia entre casquetes, mayor es el valor de la relación  $R_L/X_L$ . Esta dependencia está muy influenciada por el radio del casquete, que en las simulaciones realizadas en este epígrafe coincide con la altura. Así, para distancias entre casquetes similares, cuanto mayor es el radio menor es el valor de la relación  $R_L/X_L$ , es decir, más intenso es el efecto rugoso. Es posible observar un extraño cambio de tendencia para el radio 50 nm que posiblemente esté relacionado con el comportamiento de  $R_L$  para radios menores que la profundidad de penetración que se mencionará más adelante.



**Figura 7.19.** Representación de la relación  $R_L/X_L$  en función de la distancia entre casquetes para diferentes radios de casquetes

En la Figura 7.20 se representa la relación  $R_L/X_L$  en función del valor cuadrático medio de la altura rugosa para diferentes radios de casquetes. Parece que esta magnitud no es la más adecuada como parámetro geométrico característico de la interfaz rugosa. Para valores cuadráticos medios muy similares, se obtienen valores de  $R_L/X_L$  muy distintos. Una caracterización de la rugosidad mediante la longitud de correlación y el valor cuadrático medio no resulta óptima. Utilizar en este caso el incremento de superficie rugosa,  $\Delta S_r$ , puede derivar en la obtención de mejores resultados.

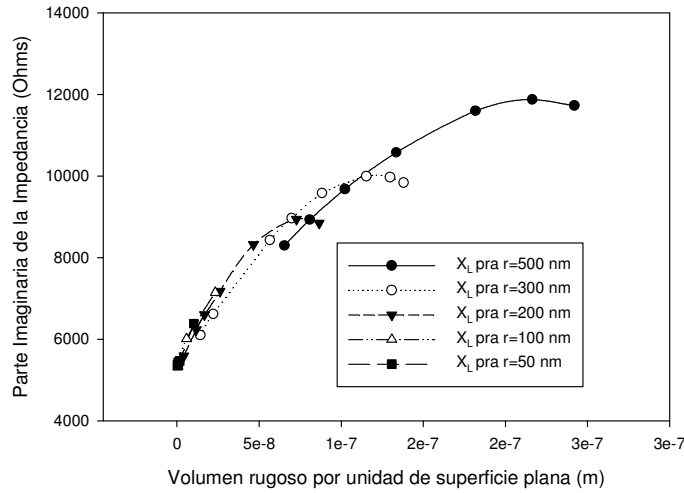


**Figura 7.20.** Representación de la relación  $R_L/X_L$  en función del valor cuadrático medio de la altura rugosa

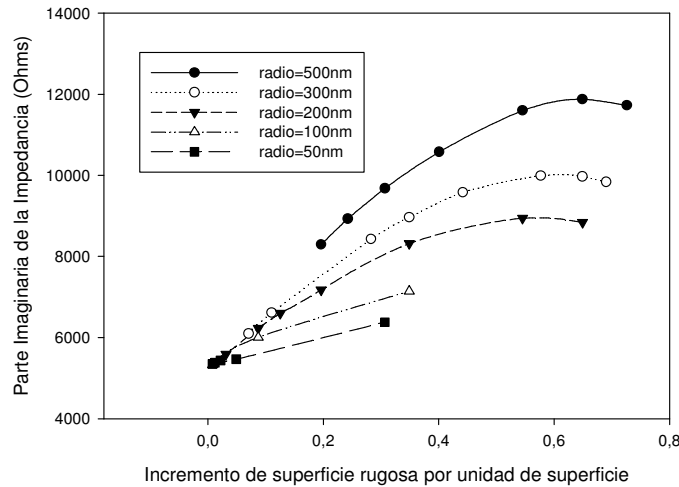
Aunque la relación  $R_L/X_L$  proporciona información relevante, es necesario también estudiar el valor del módulo, la parte real e imaginaria de la impedancia acústica para poder cuantificar exactamente la magnitud del efecto rugoso. Por ello, resulta interesante estudiar qué parámetros geométricos resultan más adecuados para su descripción.

En la Figura 7.21 se representa la parte imaginaria de la impedancia acústica frente al valor del incremento de volumen rugoso por unidad de superficie plana para distintos valores de radio de casquete. Resulta evidente que, con independencia del valor del radio del casquete, todas las simulaciones siguen una tendencia definida, que se podría aproximar por una recta. Solamente en los casos en los que el volumen rugoso es mayor para cada uno de los radios se aprecia un distanciamiento de esta tendencia en forma de progresivo descenso del valor esperado de  $X_L$ . Sin duda este efecto es debido a la interferencia entre casquetes mencionada anteriormente. Parece adecuado por tanto, afirmar que el valor de  $X_L$  depende directamente del incremento de volumen rugoso, y que una vez conocido éste sería posible extraer el valor de  $X_L$ , al menos en una superficie de geometría regular como la modelada.

En la Figura 7. 22 se representa la parte imaginaria de la impedancia acústica en función de  $\Delta S_r$ . Se aprecia que el valor de  $X_L$  crece con el incremento de  $\Delta S_r$ , hasta llegar a un valor máximo donde comienza a disminuir. Esta disminución se corresponde con el efecto de interferencia entre casquetes vecinos. El crecimiento del valor de  $X_L$  es tanto mayor cuanto mayor es el radio de los casquetes, cuya influencia es notoria.



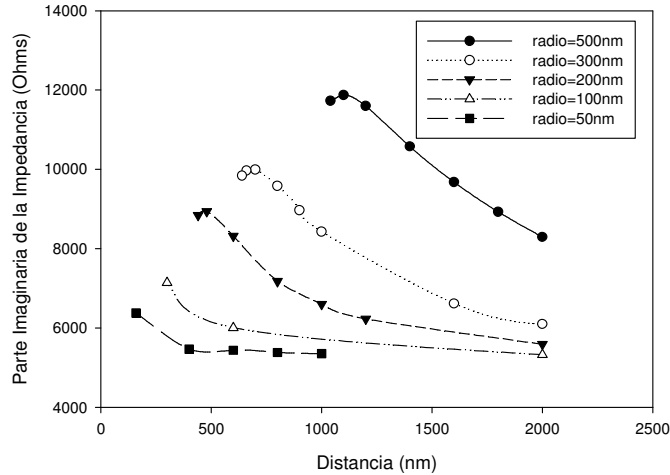
**Figura 7.21.** Representación de la parte imaginaria de la impedancia acústica en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana



**Figura 7.22.** Representación de la parte imaginaria de la impedancia acústica en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana

En la Figura 7.23 se representa la parte imaginaria de la impedancia acústica en función de la distancia entre casquetes. Se produce el efecto esperado: cuanto menor es la distancia entre casquetes mayor es el efecto rugoso y por lo tanto mayor el valor de la parte imaginaria de la

impedancia. Esta tendencia se rompe para valores muy pequeños de la distancia entre casquetes donde el efecto de interferencia entre casquetes se manifiesta notoriamente y el valor de  $X_L$  disminuye. Esta representación está muy influenciada por el valor del radio de los casquetes lo que implica que no es muy adecuada para caracterizar el efecto rugoso.

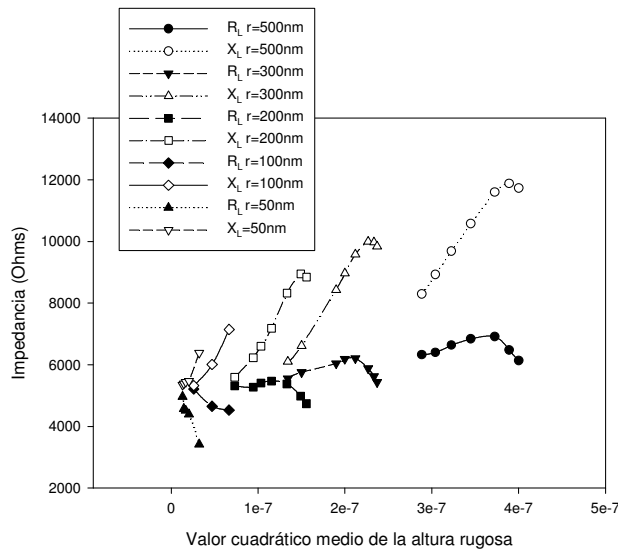


**Figura 7.23.** Representación de la parte imaginaria de la impedancia acústica en función de la distancia entre casquetes.

En la Figura 7.24 se han representado tanto los valores de la parte imaginaria de la impedancia acústica como los de la parte real en función del valor cuadrático medio de la altura rugosa. A pesar de que este parámetro resultaba poco adecuado para describir la relación  $R_L/X_L$  como se pone de manifiesto en la Figura 7.20, en el caso de la parte real y la parte imaginaria de la impedancia acústica se obtienen resultados interesantes. En la Figura 7.24 es posible distinguir fácilmente una tendencia lineal en la parte real de la impedancia que permitiría conocer su valor si se conociese el valor cuadrático medio o viceversa. Esta tendencia solamente se rompe para ciertos valores, en los que se produce un descenso en el valor de  $R_L$  esperado debido a los efectos de interferencia entre los casquetes. La dependencia de  $X_L$  con respecto al valor cuadrático medio de la altura es algo más complicada pero también puede resultar útil. Se observan diversas curvas de dependencia. El origen de cada una de estas curvas tiene una tendencia asintótica creciente con el valor cuadrático medio. Asimismo, la pendiente de cada una de las rectas por las que podríamos aproximar las curvas de dependencia varía también en función del valor cuadrático medio. En la parte superior de estas curvas, se aprecia

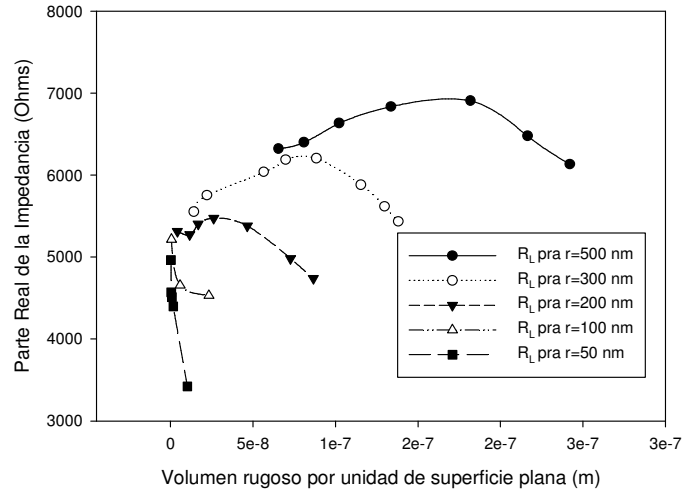


el efecto interferente de los casquetes vecinos. A pesar de que esta representación es muy orientativa del comportamiento de la impedancia acústica de una superficie rugosa, su elevada complejidad y la fuerte dependencia con el radio de los casquetes no la hacen adecuada para caracterizar unívocamente una superficie rugosa a partir de medidas de impedancia acústica.



**Figura 7.24.** Representación de la parte real e imaginaria de la impedancia acústica en función del valor cuadrático medio de la altura rugosa

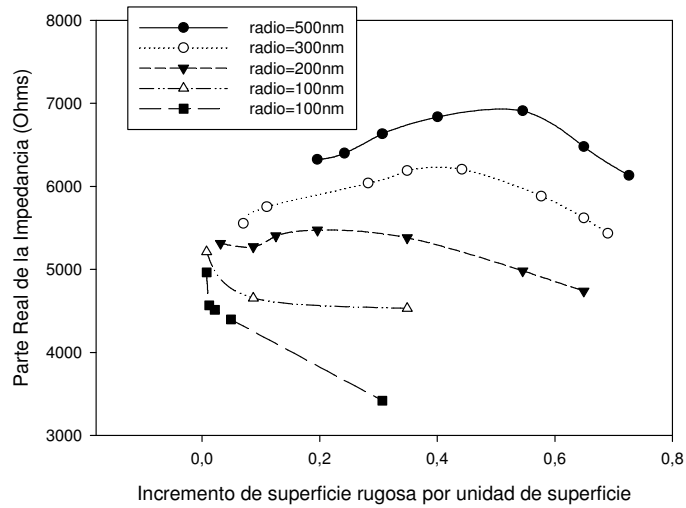
Continuando con el estudio del parámetro de la impedancia acústica  $R_L$ , en la Figura 7.25 se representa el valor de la parte real de la impedancia acústica en función del incremento de volumen rugoso por unidad de superficie plana. La dependencia es mucho más compleja que en la Figura 7.21. Además, los efectos de las interferencias son mucho más notables, por lo que el error introducido al tratar de determinar el valor de  $R_L$  a partir de  $V_r$  sería mucho mayor. Se hace notar que, para valores de  $r < \delta$ , el comportamiento de  $R_L$  es extraño. Los valores se reducen mucho, descendiendo por debajo del valor teórico de la parte real de la impedancia de una superficie plana (5279 Ohms). Este efecto no se menciona en la bibliografía conocida. Se desconoce si este efecto es debido a problemas de resolución de la malla de volúmenes finitos o es un efecto real predicho por las simulaciones numéricas. Se propone diseñar estudios experimentales específicos para estudiar este fenómeno.



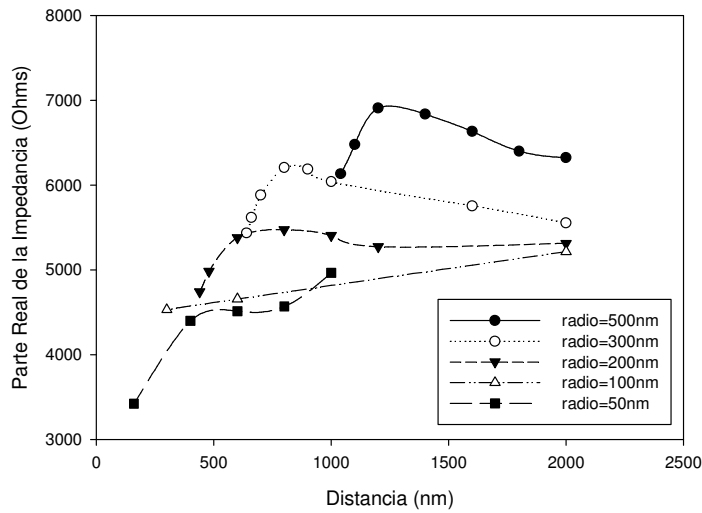
**Figura 7.25.** Representación de la parte real de la impedancia acústica en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana

En la Figura 7. 26 se representa la parte real de la impedancia en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana. Para valores de  $r < \delta$  se aprecia que los valores de  $R_L$  descienden por debajo del valor teórico esperado para una superficie plana como se ha mencionado anteriormente. También se observa que el valor de la parte real de la impedancia es mayor cuando mayor es el radio de los casquetes. Esta dependencia con el valor del radio produce que existan distintos valores de  $R_L$  que producen el mismo valor de  $\Delta S_r$ , lo que impide que esta representación caracterice adecuadamente el fenómeno rugoso.

En la Figura 7. 27 se representa la parte real de la impedancia acústica en función de la distancia entre casquetes. Se aprecia claramente que  $R_L$  aumenta con la disminución de  $\Delta S_r$ , hasta llegar a un umbral donde se empieza a manifestar el efecto de interferencia entre casquetes. Esta representación tampoco resulta adecuada puesto que el mismo valor de distancia entre casquetes puede generar distintos valores de  $R_L$  según el radio.



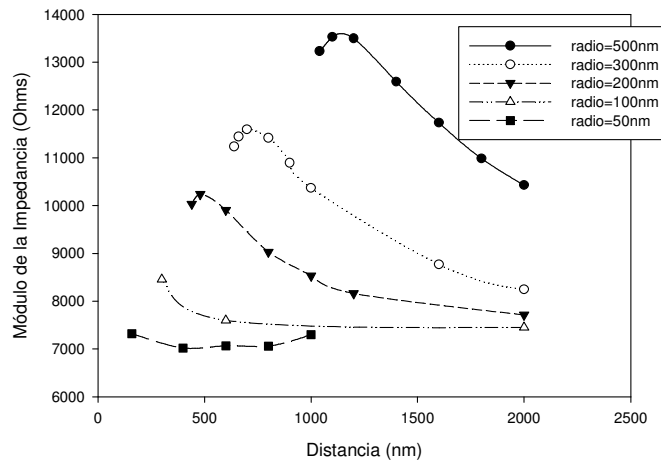
**Figura 7.26.** Representación de la parte real de la impedancia acústica en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana.



**Figura 7.27.** Representación de la parte real de la impedancia acústica en función de la distancia entre casquetes.

Para finalizar, estudiaremos el comportamiento del módulo de la impedancia acústica en función de los diferentes parámetros geométricos con los que se ha trabajado hasta el momento.

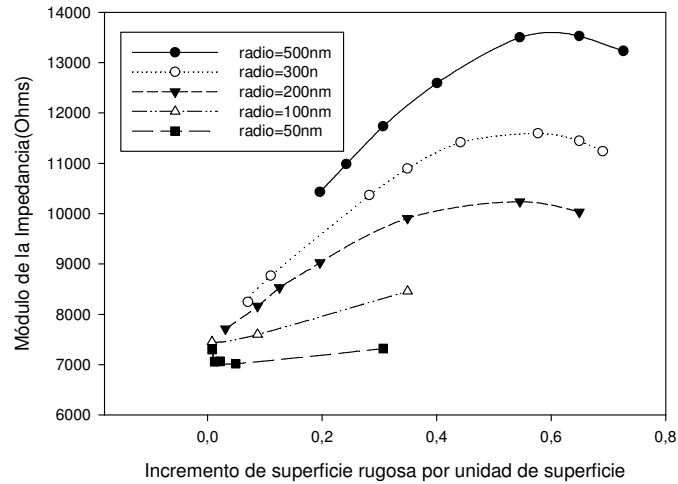
En la Figura 7.28 se representa el módulo de la impedancia acústica en función de la distancia entre casquetes. Se observa que el módulo crece generalmente cuando la distancia entre los casquetes disminuye, es decir cuando la rugosidad es mayor. Esto no sucede cuando las distancias entre casquetes son muy reducidas, puesto que se manifiesta el efecto de interferencia mencionado anteriormente en numerosas ocasiones. No parece una representación que caracterice adecuadamente el fenómeno rugoso, puesto que existen distintas superficies con el mismo valor de distancia entre casquetes que producen distintos valores del módulo de impedancia acústica.



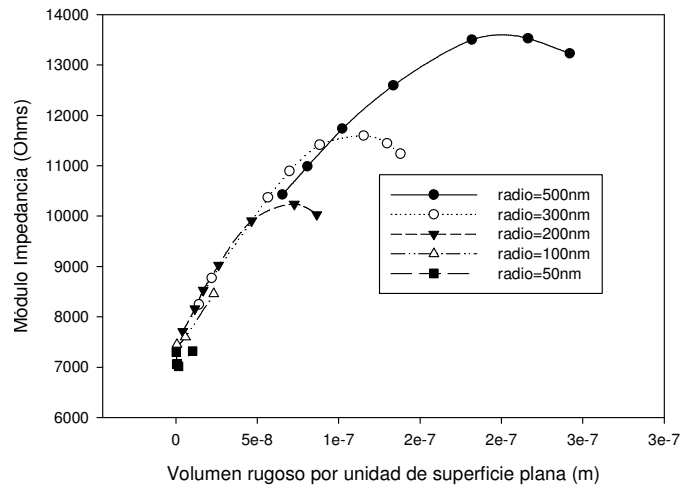
**Figura 7.28.** Representación del módulo de la impedancia acústica en función de la distancia entre casquetes.

En la Figura 7.29, se representa el módulo de la impedancia acústica en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana. Se puede apreciar que el módulo crece con el crecimiento de  $\Delta S_r$ , hasta llegar al límite producido por la interferencia entre casquetes. También se observa que la correspondencia entre el módulo y  $\Delta S_r$  no es unívoca, por lo que esta representación no parece adecuada para caracterizar el efecto rugoso.

En la Figura 7.30 se representa el módulo de la impedancia acústica en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana. Esta figura es muy similar a la Figura 7.21. Esta representación caracteriza adecuadamente el fenómeno rugoso puesto que existe una relación clara entre  $V_r$  y el módulo de la impedancia, muy independiente del radio del casquete.

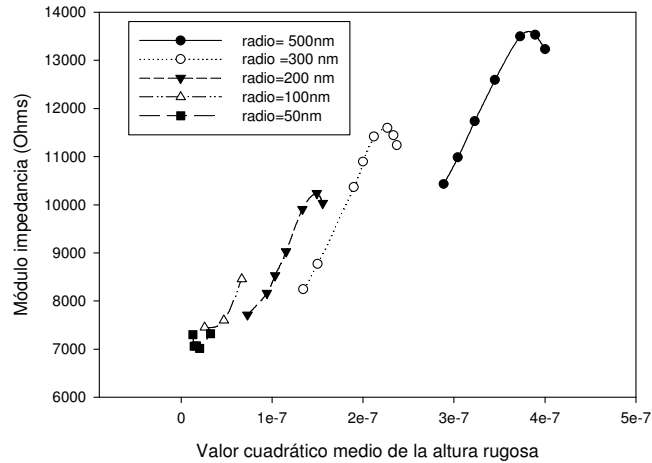


**Figura 7.29.** Representación del módulo de la impedancia acústica en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana.



**Figura 7.30.** Representación del módulo de la impedancia acústica en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana.

En la Figura 7.31, se representa el módulo de la impedancia acústica en función del valor cuadrático medio de la altura rugosa. En esta representación se aprecia que el radio del casquete tiene una influencia notable en la relación, por lo que no se puede decir que caracterice adecuadamente el fenómeno rugoso.



**Figura 7. 31.** Representación del módulo de la impedancia acústica en función del valor cuadrático medio de la altura rugosa.

Tras realizar un estudio pormenorizado de las relaciones entre los parámetros de la impedancia acústica y la geometría superficial rugosa se concluye que las relaciones óptimas para caracterizar el efecto rugoso de una superficie regular de casquetes son principalmente tres. La primera de ellas es el ratio  $R_L/X_L$  en función del incremento de superficie rugosa,  $\Delta S_r$ . Para radios de casquete mayores que la profundidad de penetración, esta representación (Figura 7.17) proporciona unas curvas muy similares, las cuales pueden ser consideradas como una relación aproximadamente unívoca entre  $R_L/X_L$  y  $\Delta S_r$ .

La segunda representación óptima del efecto rugoso sobre el valor de la impedancia acústica superficial es la relación entre  $X_L$  y  $V_r$  (Figura 7.21). Parece posible hallar una relación cuasi-lineal entre estos dos parámetros si se obvian los efectos interferentes cuando los casquetes están muy próximos entre sí.

La tercera representación es la del módulo de la impedancia acústica en función de  $V_r$  (Figura 7.30). Esta relación es equivalente a la anterior y muestra la misma relación cuasi-lineal con los efectos de interferencia entre casquetes que se apartan de la asíntota común.

En el siguiente epígrafe se aborda la posibilidad de utilizar las relaciones que caracterizan de manera óptima el efecto rugoso, enumeradas anteriormente, para desarrollar un modelo totalmente empírico de la rugosidad superficial. Se hace notar que bastaría con el uso de las dos primeras relaciones citadas en el párrafo anterior para, a través de la medida de la impedancia acústica obtener  $\Delta S_r$  y  $V_r$ , suficientes para caracterizar la geometría de una superficie rugosa.

## 7.6 Modelo semi-empírico del efecto sobre la impedancia acústica de la rugosidad superficial

En este epígrafe se propone un modelo, que denominamos semi-empírico por estar basado en resultados de simulaciones numéricas, del efecto rugoso en la impedancia acústica superficial de un cristal de cuarzo resonante. Para ello se pretende utilizar las dependencias entre  $R_L/X_L$  y  $\Delta S_r$ , y entre  $X_L$  y  $V_r$ , obtenidas para el caso de una superficie de casquetes semi-esféricos distribuidos regularmente.

La aplicación de este modelo en la extracción de propiedades geométricas de superficies reales a partir de medidas de la impedancia acústica implicaría la suposición de que el efecto rugoso de una superficie aleatoria podría ser modelado por una superficie equivalente de casquetes uniformemente distribuidos.

Para la obtención de este modelo se obvian los resultados de las simulaciones con superficies de casquetes cuyo radio sea inferior a la profundidad de penetración. Esta condición se impone tras observar los resultados del epígrafe anterior y comprobar que en estos casos los valores de impedancia acústica se alejan de los esperados, descendiendo el valor de  $R_L$  por debajo del teórico para una superficie plana. Como se ha mencionado en ese mismo epígrafe, se propone el diseño de experimentos específicos para estudiar en profundidad este fenómeno.

El paso fundamental en la obtención de un modelo semi-empírico es el cálculo de las funciones que relacionan los parámetros de impedancia acústica con los parámetros geométricos. Estos cálculos se han realizado mediante el ajuste de mínimos cuadrados. En la Figura 7. 32 se representa la relación entre  $R_L/X_L$  y  $\Delta S_r$  obtenida en la simulación de superficies de casquetes. Como se puede ver en la figura, se ha realizado un ajuste basado en una exponencial negativa. La bondad del ajuste es grande como pone de manifiesto la correlación obtenida entre la curva y los puntos de simulación de  $R^2=0.9821$ .

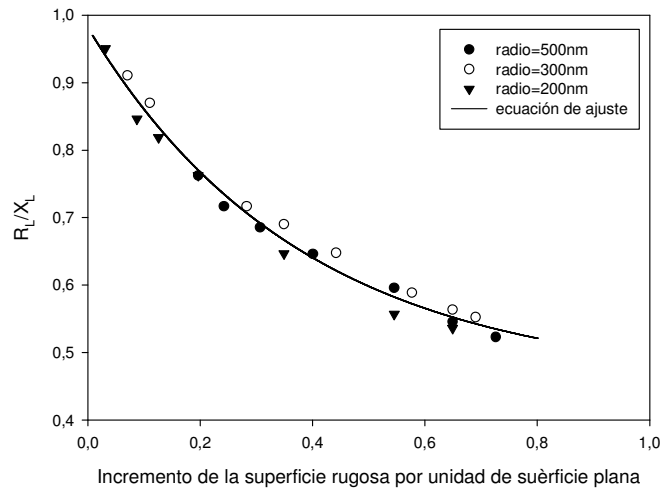
La ecuación (7.4) muestra el ajuste final.

$$R_L / X_L = 0.4569 + 0.5236e^{-2.6226\Delta S_r} \quad (7.4)$$

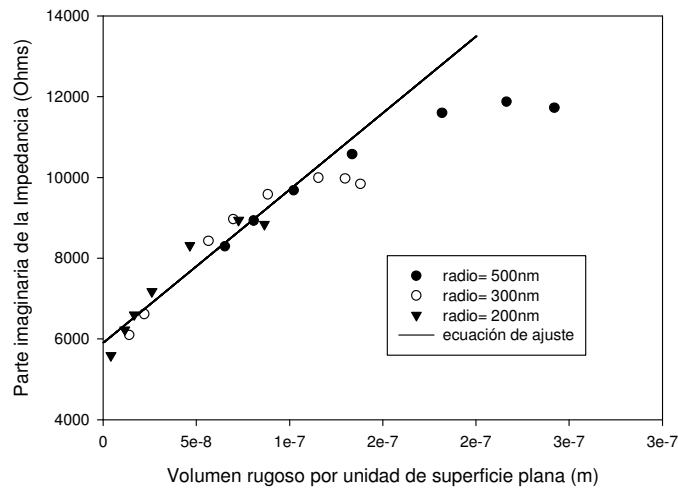
En la Figura 7. 33 se muestra la relación entre la parte imaginaria de la impedancia acústica y el volumen rugoso por unidad de superficie plana para las simulaciones realizadas con superficies de casquetes, así como la curva de ajuste obtenida suponiendo un modelo de variación lineal. Este ajuste tiene una correlación de  $R^2=0.9517$  y su ecuación se muestra en (7.5). Se hace notar que este ajuste se ha realizado prescindiendo de los

puntos finales de las curvas para cada radio, los cuales se alejan de la asíntota común por efecto de la interferencia entre casquetes.

$$X_L = 5909.72 + 37964044102.29V_r \tag{7.5}$$



**Figura 7.32.** Ajuste de mínimos cuadrados de la relación entre  $R_L/X_L$  y el incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana obtenidos en las simulaciones de volúmenes finitos con superficies de casquetes.



**Figura 7.33.** Ajuste de mínimos cuadrados de la relación entre  $X_L$  y el volumen rugoso por unidad de superficie plana obtenidos en las simulaciones de volúmenes finitos con superficies de casquetes.



Mediante el uso de las ecuaciones (7.4) y (7.5) es posible extraer los valores equivalentes de  $V_r$  y  $\Delta S_r$  de una superficie a partir de la medida de impedancia acústica.

## **7.7 Desarrollo de una corrección armónica semi-empírica del modelo de Arnau**

Una vez investigado el comportamiento de la impedancia acústica en superficies regulares, se tratará de aplicar estos resultados junto con el conocimiento matemático obtenido en el desarrollo de la parte 3 de la aportación para tratar de mejorar el modelo de Arnau simple incluyendo los efectos de las condiciones de contorno armónicas. El objetivo es obtener un nuevo modelo semi-empírico capaz de caracterizar la respuesta de un cristal de cuarzo rugoso una vez conocidas ciertas características geométricas. También se trabajará sobre el caso inverso, en el que una vez medida la impedancia acústica del sensor, se trata de extraer su geometría rugosa.

### **7.7.1 Planteamiento de una descripción matemática del efecto interferente**

El objetivo final de este epígrafe es el de obtener una expresión suficientemente simple, con sentido físico, para modelar el efecto de la superficie rugosa en la respuesta de un cristal de cuarzo en medio líquido incluyendo condiciones de contorno armónicas.

Según se puede deducir en la introducción del artículo de Cheng y Papanicolaou '*Flow Past Periodic Arrays of Spheres at Low Reynolds Number*' [Cheng97], la formulación matemática usual de la fuerza de arrastre en el problema de un flujo atravesando una distribución periódica de cuerpos sólidos con una forma determinada, generalmente esferas, resulta ser el producto de la solución para el caso de ese objeto aislado, y una serie infinita que modela el efecto interferente. El primer término de esta serie, la cual debe truncarse para poder definir una solución cerrada del problema, siempre es la unidad. El resto de los términos de la serie son función de las características geométricas de la distribución espacial periódica de la agrupación de sólidos [Hasimoto59].

En el caso que nos ocupa, la magnitud de interés es la impedancia acústica en el interfaz sólido-líquido, que como es bien sabido está directamente relacionada con la fuerza de arrastre. Como se ha comentado en la introducción y en aportaciones anteriores de este trabajo de

investigación, Arnau propuso un modelo para el efecto rugoso superficial en un cristal resonador de cuarzo basado en la fuerza de arrastre a la que se ve sometida una única esfera oscilante en un medio fluido [Arnau05]. La expresión obtenida en el desarrollo de ese modelo para la impedancia acústica superficial, sirve de base para el desarrollo de un nuevo modelo semi-empírico con condiciones de contorno armónicas.

En el desarrollo matemático propuesto en la parte 3 de la aportación de este trabajo de investigación, se detecta una clara dependencia del campo de velocidades, que finalmente derivará en una aproximación de la fuerza de arrastre [Burgers41], con una serie de términos exponenciales negativos. Estos términos resultan del uso de series de Fourier para afrontar la definición de la periodicidad espacial de la agrupación de esferas. En sus exponentes, aparecen recurrentemente relaciones directas con las distancias entre los centros de las esferas. Asimismo, en estos exponentes, aparecen relaciones inversas a la profundidad de penetración en el medio.

Estos resultados, tiene sentido físico, puesto que cuanto mayores sean las distancias entre las esferas, menor debe ser el efecto interferente, y cuanto mayor sea la profundidad de penetración en el medio, mayor debe ser el efecto de las esferas vecinas.

A continuación, se propone una corrección semi-empírica para el modelo simple de Arnau que se muestra en las ecuaciones (7.6) y (7.7).

$$R_L = \frac{\eta_2}{\delta} + \left( \left( \frac{3}{2} \frac{\eta_2}{\delta} \Delta S_r + \frac{3\pi\eta_2 N h_r}{S_q} \right) \left( 1 - e^{-A \frac{(d-h_r)}{\pi\delta}} - e^{-B \left( \frac{d-h_r}{\pi\delta} \right)^2} \right) \right) \quad (7.6)$$

$$X_L = \frac{1}{2} \omega \rho_2 \delta + \left( \left( \frac{3}{2} \frac{\eta_2}{\delta} \Delta S_r + \frac{1}{2} \omega \rho_2 V_r \right) \left( 1 - e^{-C \frac{(d-h_r)}{\pi\delta}} - e^{-D \left( \frac{d-h_r}{\pi\delta} \right)^2} \right) \right) \quad (7.7)$$

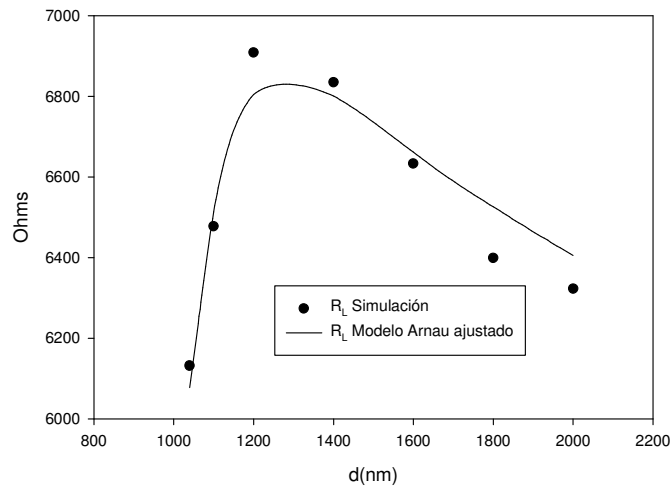
Como se puede observar en las ecuaciones anteriores, se ha tomado como base el modelo de Arnau simple. Posteriormente, se han multiplicado por una serie exponencial solamente los términos no planos, es decir, los términos que derivan de la introducción de casquetes en la superficie original plana. Con el fin de obtener un modelo lo suficientemente simple y manejable, se ha supuesto una serie para modelar la interferencia truncada en el tercer término. La distancia entre los casquetes se toma como la diferencia entre la distancia entre los centros de dos casquetes vecinos y el radio de los casquetes. En nuestras simulaciones, la altura es igual al radio.

Los términos  $A$ ,  $B$ ,  $C$  y  $D$ , se han incluido para poder realizar un ajuste semi-empírico entre los resultados proporcionados por el modelo *extendido* de Arnau y los resultados obtenidos en las simulaciones de superficies de casquetes mediante el método de los volúmenes finitos. En el caso en el que la altura del casquete empleado no coincidiese con su radio, estos coeficientes deberían ser, en principio, recalculados.

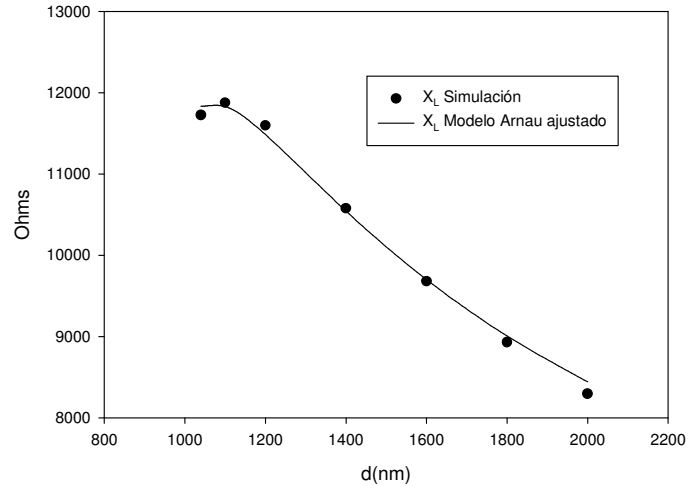
Las simulaciones en las que se modelan superficies planas con inclusiones de casquetes realizadas en este trabajo de investigación se organizan en diferentes bloques por el radio del casquete. Para cada uno de estos bloques de simulaciones, se varía la distancia entre los casquetes. En este epígrafe se calcula el valor óptimo de los coeficientes  $A$ ,  $B$ ,  $C$  y  $D$  para cada uno de los bloques de simulaciones de distinto radio. El objetivo es obtener los coeficientes que minimicen el error relativo entre los resultados obtenidos numéricamente y los valores predichos por el modelo extendido de Arnau. Se ha decidido realizar el ajuste por bloques debido a que en el proceso se ha observado la dependencia de los coeficientes  $A$ ,  $B$ ,  $C$  y  $D$  con el radio.

En la Figura 7.34 y Figura 7.35 se puede observar, respectivamente, el ajuste de la parte real e imaginaria de la impedancia acústica del modelo de Arnau corregido a los resultados numéricos obtenidos por medio del método de los volúmenes finitos para un radio de casquetes de 500 nm.

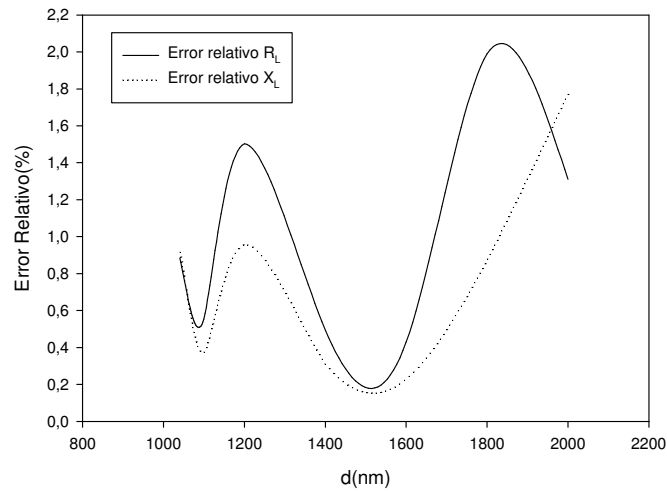
En la Figura 7.36 se muestra el error cometido en el ajuste, tanto para la parte real como para la parte imaginaria. El error es mayor para la parte real que para la parte imaginaria, pero no supera en ningún caso el 2%.



**Figura 7.34.** Ajuste de la parte real predicha por el modelo de Arnau extendido a los resultados numéricos para un radio de casquetes de 500 nm



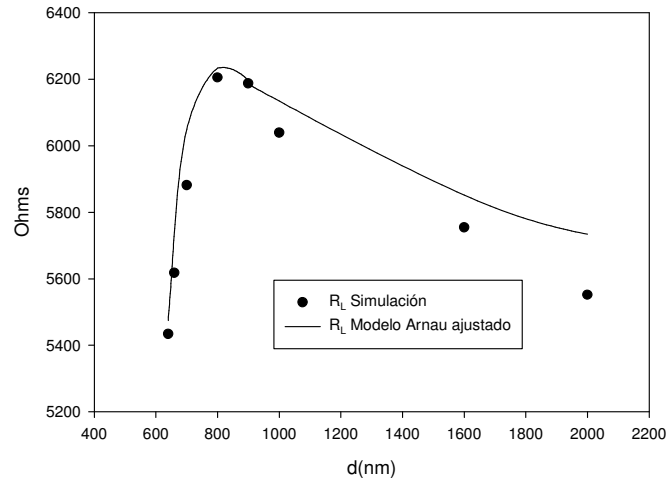
**Figura 7.35.** Ajuste de la parte imaginaria predicha por el modelo de Arnau extendido a los resultados numéricos para un radio de casquetes de 500 nm



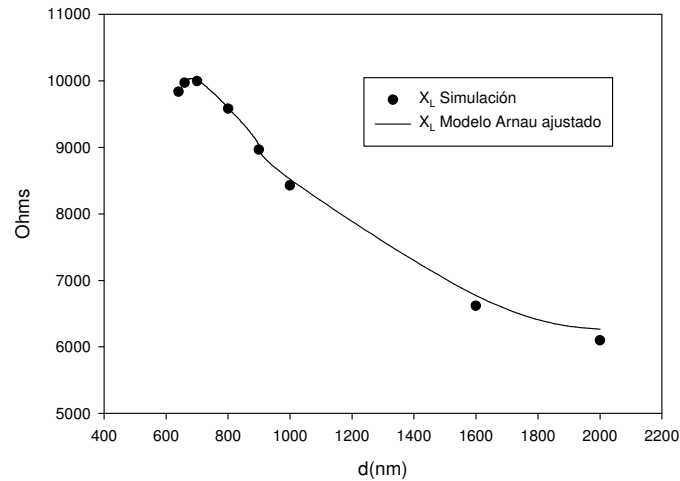
**Figura 7.36.** Error cometido en los ajustes de la parte real e imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau extendido para un radio de casquetes de 500nm.

En la Figura 7.37 y Figura 7.38 se representa el ajuste del modelo de Arnau con condiciones de contorno armónicas para la parte real e imaginaria respectivamente del bloque de simulaciones de radio 300 nm. El error cometido en el ajuste sigue siendo mayor en la parte real que en la

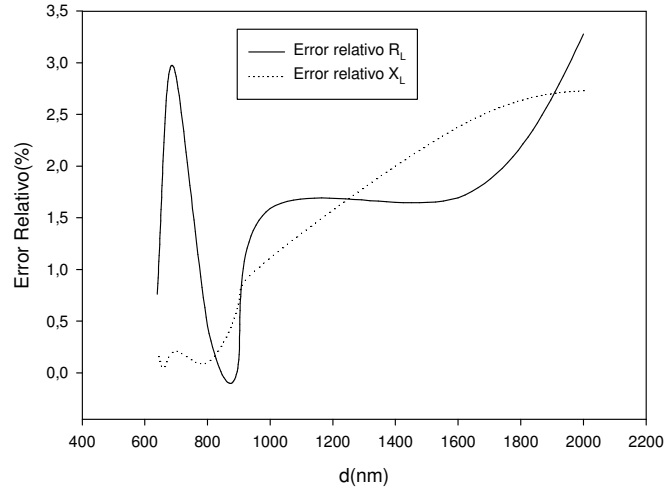
imaginaria como se observa en la Figura 7.39. En este caso, el error cometido no supera el 3.5% en ningún momento.



**Figura 7.37.** Ajuste de la parte real predicha por el modelo de Arnau extendido a los resultados numéricos para un radio de casquetes de 300 nm

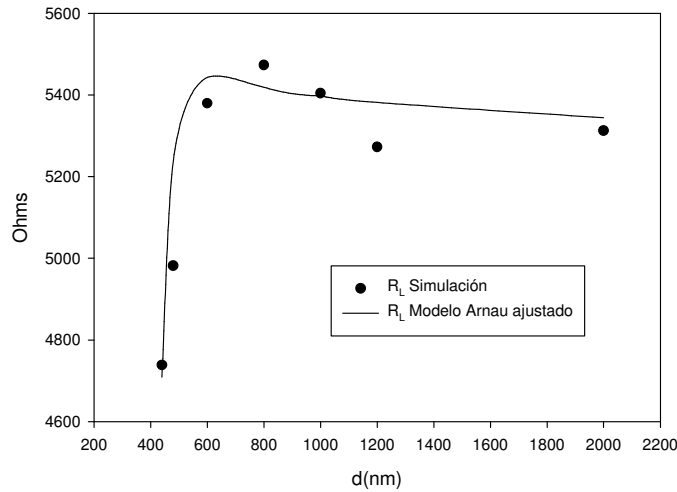


**Figura 7.38.** Ajuste de la parte imaginaria predicha por el modelo de Arnau extendido a los resultados numéricos para un radio de casquetes de 300 nm

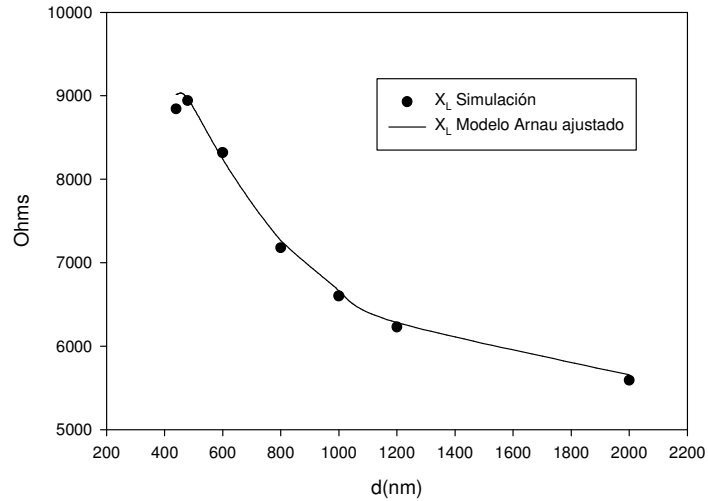


**Figura 7.39.** Error cometido en los ajustes de la parte real e imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau extendido para un radio de casquetes de 300nm

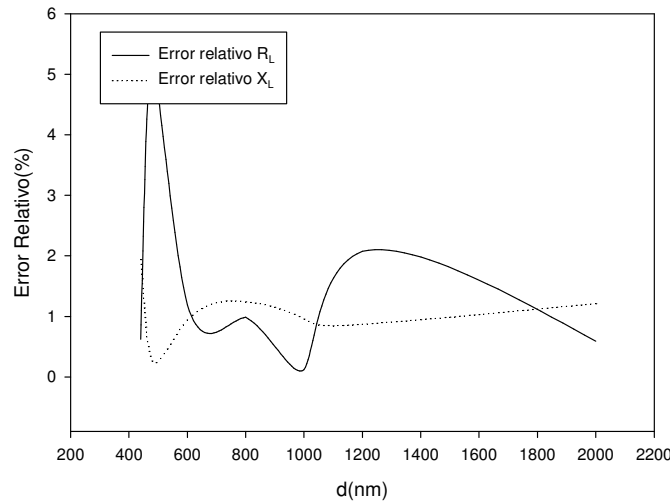
En la Figura 7.40 y Figura 7.41 se representa el ajuste para la parte real e imaginaria del modelo de Arnau corregido para un radio de 200 nm. En la Figura 7.42 se representan los errores, y se observa que mientras que el error de la parte imaginaria sigue manteniéndose muy reducido, el error de la parte real crece ligeramente, llegando en un pico al 5%.



**Figura 7.40.** Ajuste de la parte real predicha por el modelo de Arnau extendido a los resultados numéricos para un radio de casquetes de 200 nm



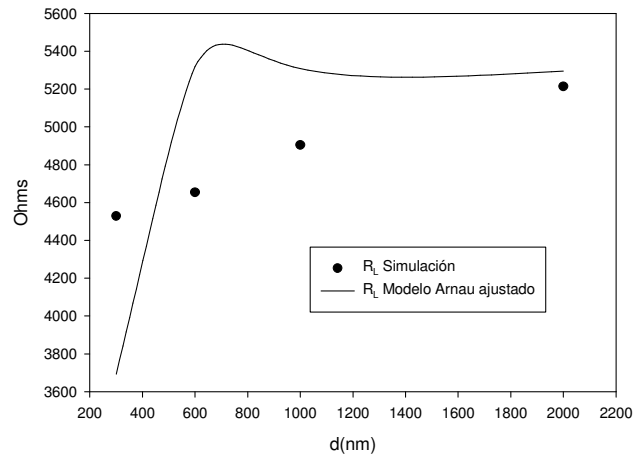
**Figura 7.41.** Ajuste de la parte imaginaria predicha por el modelo de Arnau extendido a los resultados numéricos para un radio de casquetes de 200 nm



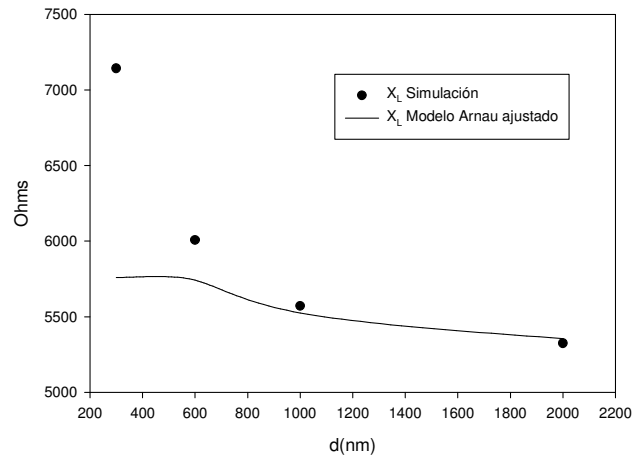
**Figura 7.42.** Error cometido en los ajustes de la parte real e imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau extendido para un radio de casquetes de 200nm

En la Figura 7.43 y en la Figura 7.44 se representa el ajuste para un radio de 100 nm. En este bloque de simulaciones el error se dispara como se observa en la Figura 7.45, llegándose a un pico del 20%. La causa de este error en el ajuste es la variación en los resultados de las simulaciones

para radios de casquete inferiores a la profundidad de penetración. Los valores de la parte real de la impedancia acústica descienden mucho, incluso por debajo del límite teórico plano. Este fenómeno, que se ha comentado previamente en el epígrafe 7.5, puede ser debido a errores de resolución en la malla de volúmenes finitos cuando los radios de los casquetes son muy reducidos o algún efecto desconocido no mencionado en la bibliografía estudiada. La corrección del modelo de Arnau no ajusta bien el comportamiento de la impedancia acústica en estos casos.

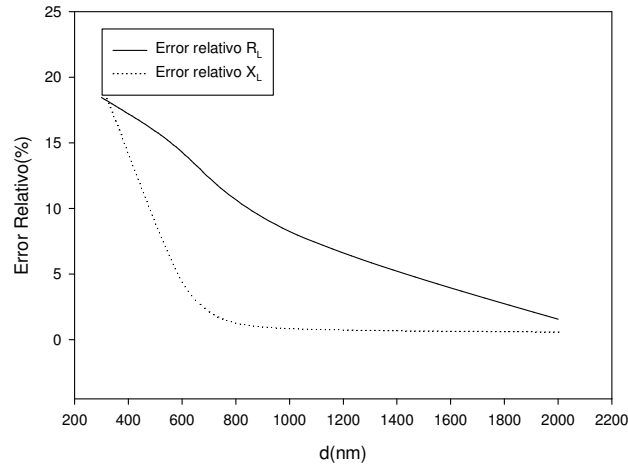


**Figura 7.43.** Ajuste de la parte real predicha por el modelo de Arnau extendido a los resultados numéricos para un radio de casquetes de 100 nm



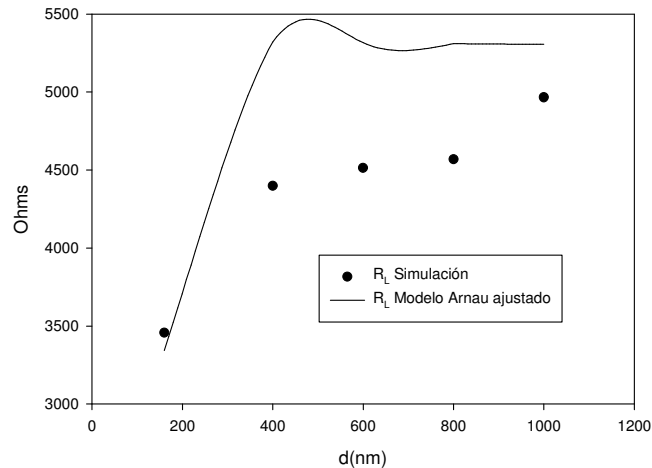
**Figura 7.44.** Ajuste de la parte imaginaria predicha por el modelo de Arnau extendido a los resultados numéricos para un radio de casquetes de 100 nm



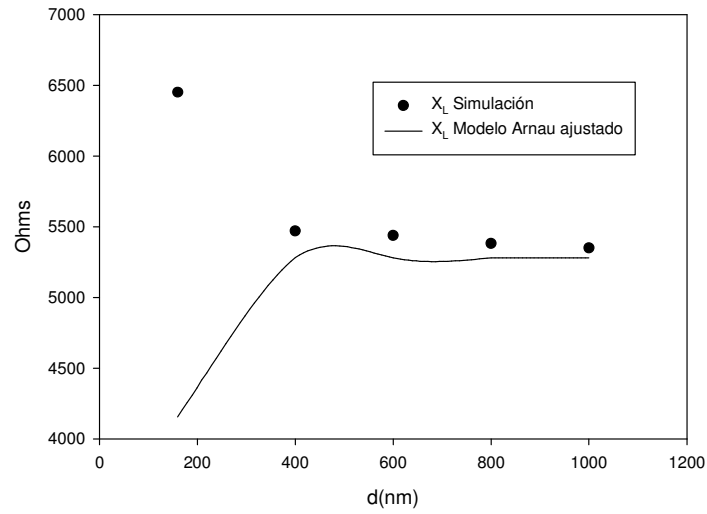


**Figura 7.45.** Error cometido en los ajustes de la parte real e imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau extendido para un radio de casquetes de 100nm

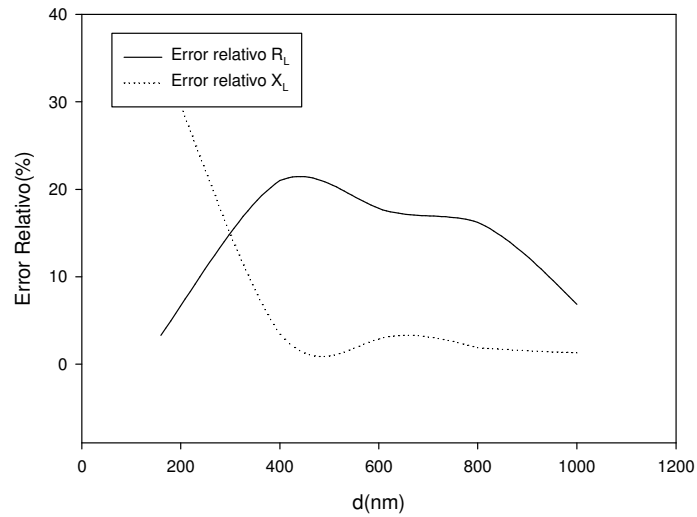
En la Figura 7.46 y en la Figura 7.47 se representan los ajustes para el último bloque de simulaciones, el de 50 nm. En la Figura 7.48 se representan los errores. En este caso, el error máximo cometido llega al 30%. Parece evidente que cuanto menor es el radio de los casquetes, más dificultades tiene la corrección del modelo de Arnau para ajustarse a los resultados obtenidos numéricamente. Sin embargo, en radios del orden de 500 a 200 nm el ajuste es muy bueno.



**Figura 7.46.** Ajuste de la parte real predicha por el modelo de Arnau extendido a los resultados numéricos para un radio de casquetes de 50 nm



**Figura 7.47.** Ajuste de la parte imaginaria predicha por el modelo de Arnau extendido a los resultados numéricos para un radio de casquetes de 50 nm



**Figura 7.48.** Error cometido en los ajustes de la parte real e imaginaria de la impedancia acústica predicha por el modelo de Arnau extendido para un radio de casquetes de 50nm

### 7.7.2 Obtención de las funciones de variación de los coeficientes de corrección en función del radio de los casquetes

Tras ajustar la corrección del modelo de Arnau y obtener para cada uno de los bloques de simulaciones con diferentes radios unos coeficientes  $A$ ,  $B$ ,  $C$  y  $D$  determinados, se trata de encontrar las funciones que gobiernan la variación de dichos coeficientes con el radio del casquete.

El objetivo es desarrollar una corrección para incluir los efectos de interferencia que prediga el efecto de la rugosidad superficial en la respuesta del sensor con independencia del radio casquete. Estas funciones permitirán una aplicación mucho más simple del modelo de Arnau con condiciones de contorno armónicas, tanto en su aplicación directa (se introducen características geométricas y se obtienen valores de impedancia acústica) como en su aplicación inversa (a partir de unos valores de impedancia acústica se obtienen los parámetros físicos equivalentes de la superficie de casquetes).

Para cada uno de los coeficientes se determina la función que mejor representa su comportamiento en función del radio del casquete. Una vez escogida, mediante un algoritmo de ajuste por mínimos cuadrados, se calculan los parámetros que determinan dicha función y la bondad del ajuste.

En la Figura 7.49 se representa la variación del coeficiente discreto  $A$  con respecto al radio del casquete. Se aprecia que la dependencia puede aproximarse por una relación lineal. Tras la aplicación de mínimos cuadrados, se determina que la recta que mejor ajusta es la de la ecuación (7.8). Esta recta también está representada en la Figura 7.49. El ajuste resulta bastante bueno, puesto que el coeficiente de correlación cuadrado o coeficiente de determinación obtenido es  $R^2=0.9049$ .

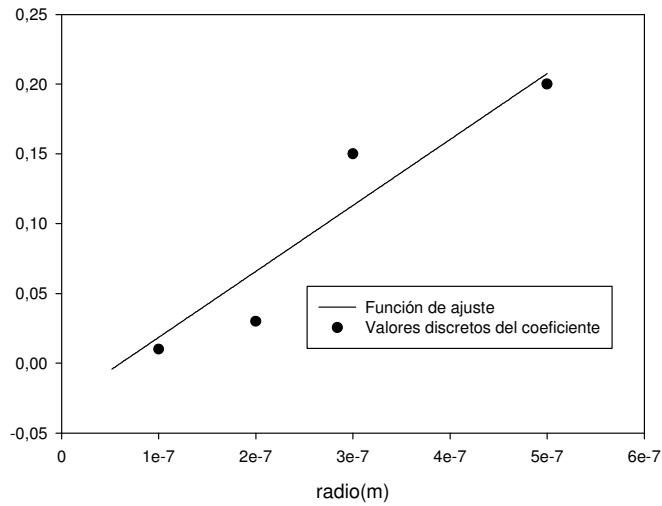
$$A = -0.0287 + (472656.25 \cdot h_r) \quad (7.8)$$

Recordemos que el coeficiente de correlación determina cuantitativamente la bondad del ajuste de las medidas al modelo de regresión [Navidi06]. Si este coeficiente toma un valor de 0, quiere decir que no existe relación entre las medidas y la curva de ajuste escogida. Si toma un valor de 1 significa que el ajuste es perfecto. Por lo tanto, cuanto más se aproxima a 1 su valor, mejor resulta el ajuste.

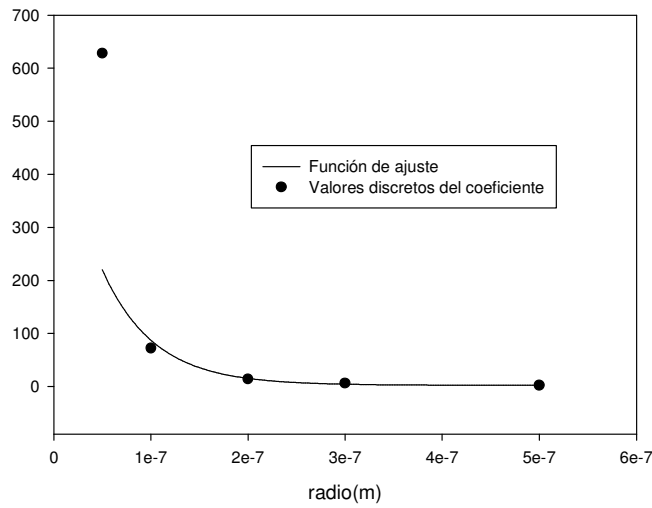
En la Figura 7.50 se representan los coeficientes  $B$  obtenidos para cada radio de casquete. Tras un estudio de la dependencia, se opta por una función exponencial con un término constante adicional para modelar la variación de  $B$ . Una vez aplicado el algoritmo de mínimos cuadrados, se obtiene la ecuación (7.9) también representada en la Figura 7.50. La

bondad del ajuste es menor que en el coeficiente A, pero aún buena, con un coeficiente de determinación  $R^2=0.8031$ .

Coeficiente A



**Figura 7.49.** Ajuste de la variación del coeficiente A en función del radio de los casquetes



**Figura 7.50.** Ajuste de la variación del coeficiente B en función del radio de los casquetes

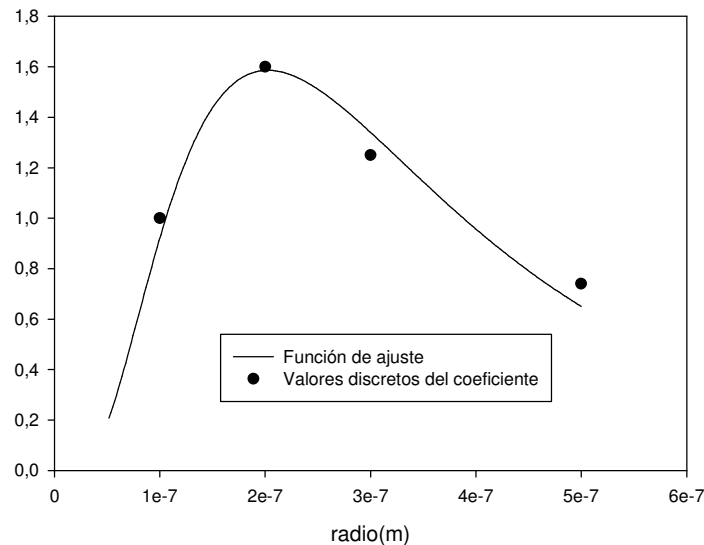
$$B = 2.3562 + 558.3889 \cdot e^{(-18823584.08 \cdot h_r)} \quad (7.9)$$

En la Figura 7.51 se representa el coeficiente  $C$  discreto en función del radio de casquete. La variación de este coeficiente es la más compleja de todas. Se opta por escoger una función Gaussiana para tratar de modelar la variación. Mediante el ajuste por mínimos cuadrados a la función se obtiene el ajuste descrito en (7.10). Este ajuste también se ha representado en la Figura 7.51. A pesar de ser la variación más compleja de los cuatro coeficientes, se obtiene el mejor ajuste con  $R^2=0.9624$ .

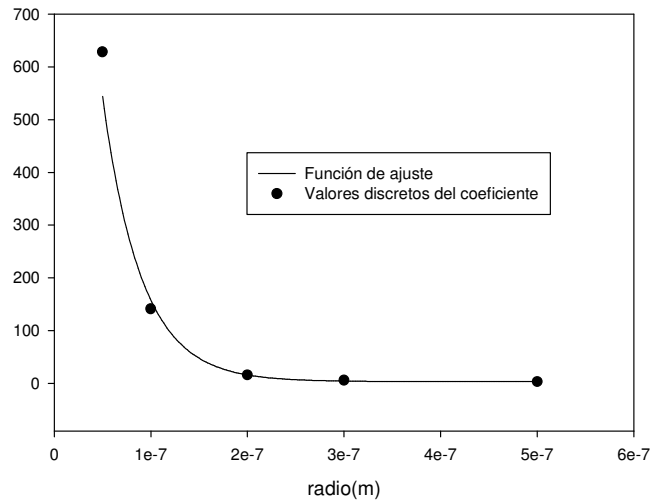
$$C = 1.5858 \cdot e^{\left(-0.5 \cdot \left(\frac{\log(h_r/2.025e-7)}{0.677}\right)^2\right)} \quad (7.10)$$

En la Figura 7.52 se representa la variación del coeficiente  $D$  en función del radio de los casquetes. Al igual que en el caso del coeficiente  $B$ , se opta por modelar el comportamiento con una función exponencial decreciente más un término constante. El resultado es bueno, obteniéndose el ajuste de la ecuación (7.11) con un coeficiente de correlación cuadrado de  $R^2=0.9113$ .

$$D = 3.5068 + 1888.62 \cdot e^{(-25012321.51 \cdot h_r)} \quad (7.11)$$



**Figura 7.51.** Ajuste de la variación del coeficiente  $C$  en función del radio de los casquetes



**Figura 7.52.** Ajuste de la variación del coeficiente D en función del radio de los casquetes

### 7.7.3 Estudio de la bondad de la aplicación inversa del modelo corregido de Arnau

Una vez propuesta una corrección completa para el modelo de Arnau, se estudiará su bondad en la predicción de las características geométricas rugosas a partir de valores de impedancia acústica para el caso de superficies de casquetes. Es decir, se evaluará la aplicación inversa del modelo corregido.

Mediante el conjunto de funciones de cálculo simbólico del programa de matemática aplicada MATLAB<sup>®</sup>, se desarrolla un algoritmo para la resolución del sistema no lineal que se plantea al tratar de obtener los valores geométricos característicos de la rugosidad a partir de valores de impedancia acústica mediante el modelo corregido de Arnau. Se trata de resolver un sistema de dos ecuaciones, las que definen  $X_L$  y  $R_L$ , con dos incógnitas,  $h_r$  y  $d$ . Posteriormente, se evalúa el método usando como valores de entrada los resultados de impedancia acústica obtenidos en las simulaciones numéricas realizadas para distintas distribuciones de casquetes y comparando los valores extraídos de  $h_{calc}$  y  $d_{calc}$  con los parámetros originales que se utilizaron para generar dichas superficies.

En las siguientes tablas se muestran los resultados para cada uno de los radios usados para realizar los modelos de volúmenes finitos. Las filas de

cada tabla se corresponden con distintas distancias entre casquetes,  $d$ , para ese mismo radio. Las columnas  $h_{calc}$  y  $d_{calc}$  son los valores extraídos mediante la aplicación inversa del modelo corregido de Arnau.

En la Tabla 7.1, en la que se muestra información de las simulaciones con radio de casquete 500 nm, se aprecia que los valores obtenidos para  $h_{calc}$  se aproximan mucho a 500 nm por debajo. En cuanto a las distancias obtenidas en el proceso, su tendencia es la correcta aunque aparece un error de unos 200nm, obteniéndose siempre distancias menores a las reales. Para distancias entre casquetes menores de 1200 nm el algoritmo no encuentra soluciones para el sistema no lineal.

En la Tabla 7.2, se muestran los resultados para una altura de casquete de 300 nm. Para  $h_{calc}$  se obtienen, en general, valores superiores al valor real. Para  $d_{calc}$  se obtienen valores superiores al valor real, excepto para distancias entre casquetes mayores de 1600 nm que sucede a la inversa. Los resultados extraídos por medio de la resolución del sistema no lineal se aproximan a los originales notablemente.

**Tabla 7.1** Extracción de los parámetros geométricos característicos de la superficie rugosa de casquete semi-esféricos para un radio de 500 nm mediante el modelo de Arnau extendido

$d(nm)$	$h_{calc}(nm)$	$d_{calc}(nm)$
2000	451	1780
1800	437	1506
1600	465	1420
1400	485	1265
1200	-	-
1100	-	-
1040	-	-

**Tabla 7.2.** Extracción de los parámetros geométricos característicos de la superficie rugosa de casquete semi-esféricos para un radio de 300 nm mediante el modelo de Arnau extendido

$d(nm)$	$h_{calc}(nm)$	$d_{calc}(nm)$
2000	250	1850
1600	327	1950
1000	338	1220
900	369	1223
800	364	1073
700	335	864
660	324	798
640	299	717

En la Tabla 7.3, Tabla 7.4 y Tabla 7.5, se muestran respectivamente los resultados para los radios 200 nm, 100nm y 50 nm. En estas tablas se aprecia que de la resolución del sistema no se obtienen resultados que coincidan con los valores reales de  $h_r$  y  $d$ .

**Tabla 7.3.** Extracción de los parámetros geométricos característicos de la superficie rugosa de casquete semi-esféricos para un radio de 200 nm mediante el modelo de Arnau extendido

$d(nm)$	$h_{calc}(nm)$	$d_{calc}(nm)$
2000	81	670
1200	89	265
1000	117,5	401
800	144	482
600	172	412
480	220	530
440	232	520

**Tabla 7.4.** Extracción de los parámetros geométricos característicos de la superficie rugosa de casquete semi-esféricos para un radio de 100 nm mediante el modelo de Arnau extendido

$d(nm)$	$h_{calc}(nm)$	$d_{calc}(nm)$
2000	10	130
1000	82	233
600	98	234
300	152	350

**Tabla 7.5.** Extracción de los parámetros geométricos característicos de la superficie rugosa de casquete semi-esféricos para un radio de 50 nm mediante el modelo de Arnau extendido

$d(nm)$	$h_{calc}(nm)$	$d_{calc}(nm)$
1000	19	134
800	27	136
600	43	151
400	103	224
160	115	233

Se concluye que, si bien, para rugosidades de alturas reducidas (picos menores de 200 nm), la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido no proporciona los resultados esperados, en el caso de alturas de pico superiores a 200 nm, se obtienen resultados aceptables de la extracción de parámetros geométricos rugosos. Este hecho se debe al error de ajuste que



se produce cuando los radios de los casquetes son menores que la profundidad de penetración. La variación del comportamiento de la impedancia acústica debería ser estudiada experimentalmente con el fin de comprobar si dicha variación corresponde a errores propios de la simulación numérica o a un efecto físico real.

Como se mostrará en el siguiente epígrafe, las alturas de pico en superficies reales de cristales resonadores de cuarzo rugosos superan ampliamente los 200 nm y la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido proporciona resultados con sentido físico.

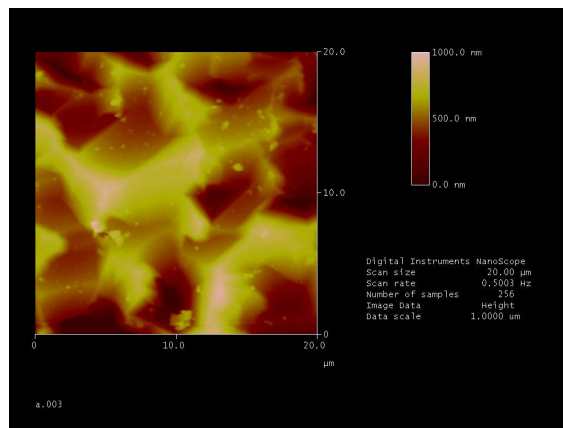
### **7.8 Estudio de la respuesta de superficies rugosas aleatorias**

Tras estudiar el comportamiento de superficies rugosas basadas en casquetes semi-esféricos mediante métodos numéricos y desarrollar a partir de los resultados obtenidos una corrección para el modelo de Arnau, se pretende ahora investigar el comportamiento de superficies rugosas aleatorias. Para ello, se realizará un estudio previo de microscopía de fuerzas atómicas (AFM, 'Atomic Force Microscope') sobre la superficie de los electrodos de oro de 4 cristales resonadores de cuarzo rugosos. Una vez tratadas las medidas obtenidas para transformarlas en imágenes de la estructura superficial de dichos cristales, se procederá a realizar un modelado tridimensional de un volumen de líquido limitado por dicha estructura superficial. Este modelo será simulado mediante el método de los volúmenes finitos con el fin de calcular los efectos rugosos sobre su impedancia acústica. Todo este proceso nos permitirá realizar un estudio numérico pormenorizado sobre una superficie real. El autor de esta tesis no tiene constancia de ningún trabajo en este campo que simule el comportamiento de superficies rugosas reales.

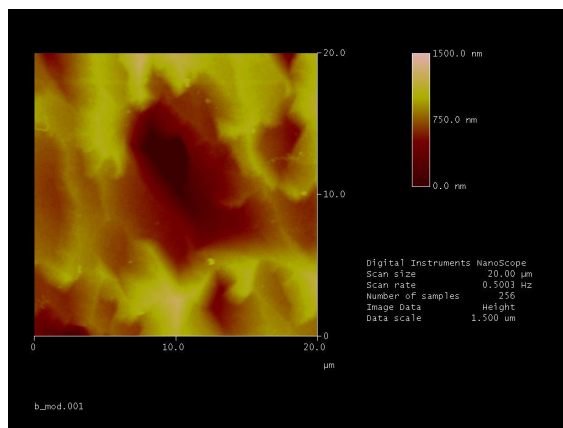
Asimismo, se pretende comprobar la validez del modelo de Arnau extendido para caracterizar dichas superficies aleatorias. Para ello, se extraerán a partir de los resultados de impedancia acústica proporcionados por las simulaciones, los valores geométricos característicos de una superficie de casquetes equivalente. Esta extracción se llevará a cabo mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau con condiciones de contorno armónicas. Se compararán los resultados obtenidos con los valores geométricos calculados a partir del tratamiento digital de las imágenes proporcionadas por el microscopio de fuerzas atómicas.

### 7.8.1 Estudio de la respuesta rugosa en los modelos de superficies aleatorias

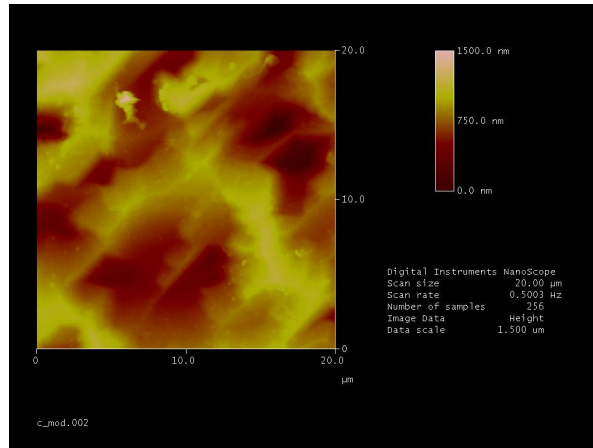
El primer paso del estudio es obtener imágenes de la superficie del electrodo de oro de 4 cristales rugosos mediante la técnica de microscopía de fuerzas atómicas. A partir de ahora se les denominará A, B, C y D. Tras una inspección preliminar, se realiza la medida de una sección de  $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$  con una frecuencia de muestreo de 0.5 Hz. Las imágenes obtenidas, de 256 puntos x 256 puntos, se muestran en la Figura 7.53, Figura 7.54, Figura 7.55 y Figura 7.56. Estas imágenes representan con colores las alturas.



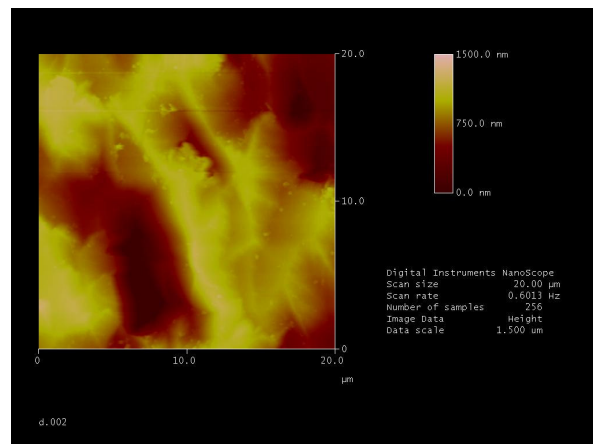
**Figura 7.53.** Imagen de la superficie rugosa del cristal resonador de cuarzo A obtenida mediante AFM.



**Figura 7.54.** Imagen de la superficie rugosa del cristal resonador de cuarzo B obtenida mediante AFM.

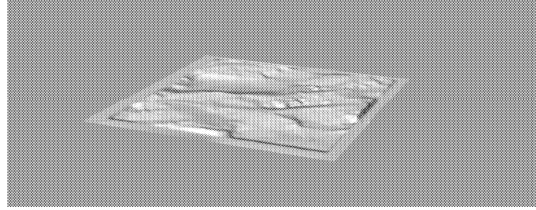


**Figura 7.55.** Imagen de la superficie rugosa del cristal resonador de cuarzo C obtenida mediante AFM.



**Figura 7.56.** Imagen de la superficie rugosa del cristal resonador de cuarzo D obtenida mediante AFM.

Una vez adquiridas las imágenes, comienza el proceso de modelado. Mediante un tratamiento de imagen complejo y la aplicación SolidWorks<sup>®</sup>, se genera una representación tridimensional de las superficies de los cristales. En la Figura 7.57 se muestra la renderización de la superficie tridimensional generada a partir de la imagen AFM adquirida del cristal D. Esta superficie será el límite inferior del modelo numérico y actuará como interfaz sólido-líquido.



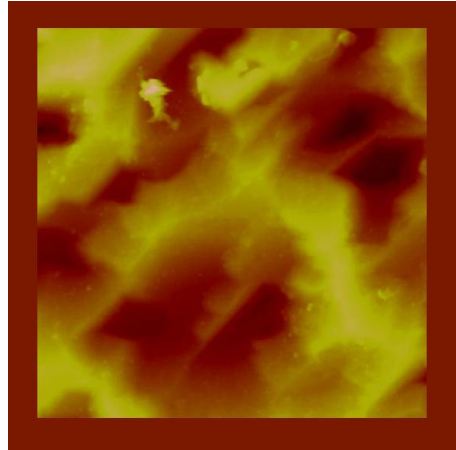
**Figura 7.57.** Renderización de la superficie tridimensional del cristal rugoso D con marco incluido.

Para modelar la región del fluido, se ha extruido la superficie de la Figura 7.57 generando un cubo de dimensión vertical 2 micras y caras planas, a excepción de la cara inferior que se corresponde con la superficie rugosa a estudiar. Considerando que la imagen tomada de la superficie del cristal es una muestra representativa de su distribución superficial media y con el fin de obtener un resultado lo más próximo a la realidad posible en el no influyan los efectos de bordes del modelo, se ha tratado de aplicar condiciones de contorno armónicas a las superficies limitantes del modelo en las direcciones  $x$  y  $z$ , siendo el eje  $y$ , la dirección de penetración de la onda acústica en el fluido.

Se hace notar que para poder aplicar la condición de contorno de 'Plano periódico' (ver apéndice FVM), las superficies simétricas a las que se aplica deben ser idénticas. Si se realiza la extrusión de las superficies originales de la Figura 7.53 a la Figura 7.56, las superficies simétricas en  $x$  y en  $z$  no son iguales debido a la irregularidad aleatoria del interfaz rugoso. Para solucionar este problema, se trata la imagen AFM antes de construir la superficie tridimensional y se le incluye un marco regular (ver Figura 7.58) que iguala todos los laterales del modelo tras la extrusión. El color de este marco se escoge de tal manera que coincide con la media de alturas de la imagen, para influir lo menos posible en el resultado de la simulación. A pesar de ello, afectará indudablemente a la respuesta simulada del cristal. En la Figura 7.57 puede apreciarse el marco en los bordes de la superficie renderizada.

Se ha escogido la condición de contorno de "muro móvil sin deslizamiento" para el interfaz sólido-líquido que en este caso esta situado en el eje  $y=0$ . El desplazamiento de esta superficie viene determinado por la ecuación (7.1). Para la superficie superior del modelo se ha escogido la condición de contorno "Abierto". Posteriormente, se ha mallado este dominio usando el algoritmo de Delaunay para discretizar las superficies externas y el algoritmo "Advancing Front" para la malla volumétrica interior (ver apéndice de FVM). Se ha escogido un tamaño máximo de

elemento volumétrico de 50 nm. Asimismo, se ha incluido la opción de "inflación" para la superficie que representa el interfaz sólido-líquido con el fin de obtener una buena resolución en la dirección de penetración de la onda de cizalla que la teoría predice. Se ha escogido un espesor de 10 nm para la primera capa de elementos "inflacionarios", hasta completar un total de 12 capas. El factor de expansión escogido es 1.2.



**Figura 7.58.** Imagen superficial AFM tras el proceso de regularización de sus lados mediante marco

Se ha realizado una simulación transitoria con un paso temporal de 2 ns. La duración total de la simulación ha sido de 0.25  $\mu$ s. Se han escogido los valores de  $\rho=997 \text{ Kg}\cdot\text{m}^{-3}$  para la densidad y de  $\eta=8.899\cdot 10^{-4} \text{ kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$  para la viscosidad del agua, suponiendo por tanto un medio incompresible y no dependiente de la temperatura.

Se ha escogido un modelo de flujo laminar tal y como se predice en la teoría [Martin93-1]. Se ha empleado el método de "aproximación de alta resolución" para la discretización del término de advección. Se ha escogido el método de "aproximación de segundo orden de Euler" para la discretización del término transitorio (ver apéndice de FVM).

Se ha supuesto que todas las componentes de velocidad y presión son nulas en el instante  $t=0$ . Se ha especificado un valor máximo del valor cuadrático medio del residuo de convergencia de  $10^{-5}$ .

Con el fin de estudiar el efecto de las diferentes orientaciones de una superficie rugosa aleatoria respecto a la dirección del movimiento de oscilación en la respuesta del sensor, se realizan dos baterías de simulaciones con los 4 modelos generados. En cada batería, el eje de la oscilación variará, siendo el  $x$  para la primera y el  $z$  para la segunda.

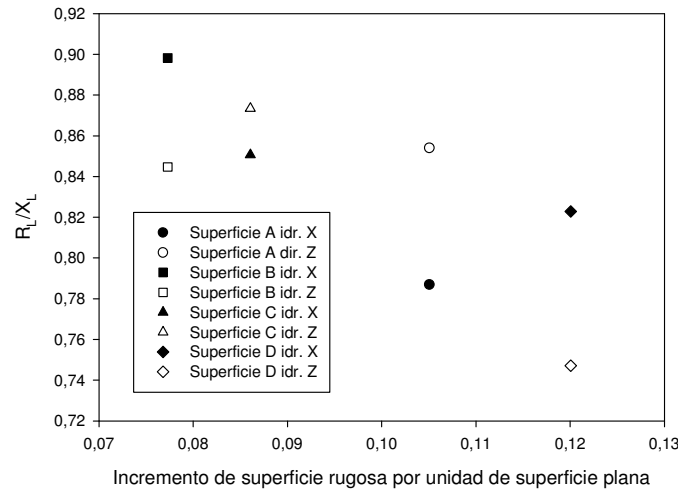
A continuación, se estudiará la impedancia acústica en función de los parámetros geométricos característicos de la rugosidad de las superficies aleatorias. Estos parámetros han sido obtenidos a partir de las imágenes AFM y se muestran en la Tabla 7. 6.

En la Figura 7.59 se representa la relación  $R_I/X_L$  en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana para todas las simulaciones realizadas con superficies aleatorias. Se hace notar que existen 4 parejas de puntos con los mismos valores de incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana. Cada una de estas parejas corresponde con cada uno de los 4 modelos (A, B, C y D) simulado con diferentes direcciones de oscilación. Mediante puntos negros se representan las simulaciones en las que se ha tomado el eje  $X$  como dirección de oscilación, mientras que con puntos blancos se representan las simulaciones en las que el eje de oscilación es el  $Z$ . Si se comparan estos valores con los valores de  $R_I/X_L$  obtenidos en el caso de superficies de casquetes (Figura 7.17), se aprecia una concordancia muy buena. En los dos casos, valores crecientes de  $\Delta S_r$  proporcionan una relación  $R_I/X_L$  decreciente. Asimismo, los ordenes de magnitud de los parámetros  $R_I/X_L$  y  $\Delta S_r$ , son muy parecidos en la superficie aleatoria y en la superficie regular de casquetes.

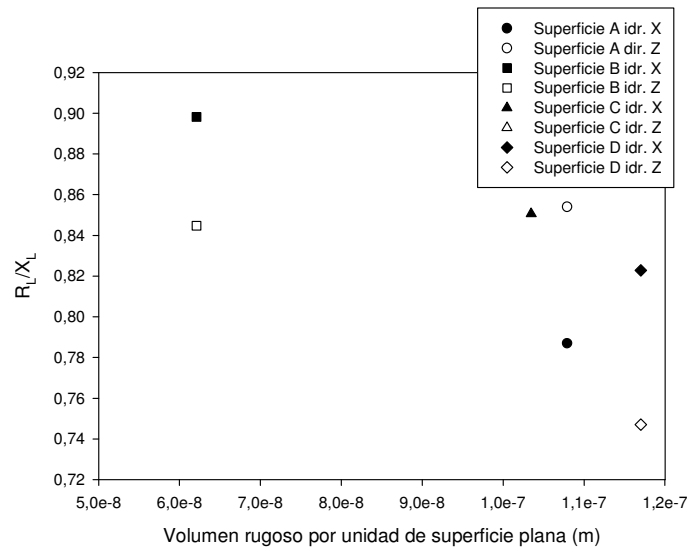
En la Figura 7.60 se representa la relación  $R_I/X_L$  en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana,  $V_r$ . Al igual que en la Figura 7.59, se aprecia que los valores de  $R_I/X_L$  son del mismo orden que los que se obtienen para una superficie de casquetes con las mismas magnitudes de  $V_r$  (Figura 7. 18), aunque en este caso las discrepancias son algo mayores. Las semejanzas son mayores con las superficies de casquetes de radio mayor que la profundidad de penetración. En la Figura 7.60 también se aprecia que la tendencia de la curva es razonable, a mayor  $V_r$  corresponde una menor  $R_I/X_L$ .

**Tabla 7. 6.** Parámetros geométricos de los 4 modelos generados: incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana y el volumen rugoso por unidad de superficie plana.

Superficie	$\Delta S_r$	$V_r$
A	1,05E-01	1,08E-07
B	7,73E-02	6,21E-08
C	8,61E-02	1,03E-07
D	1,20E-01	1,17E-07



**Figura 7.59.** Representación de los valores de  $R_L/X_L$  en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana para los 4 modelos basados en imágenes AFM.

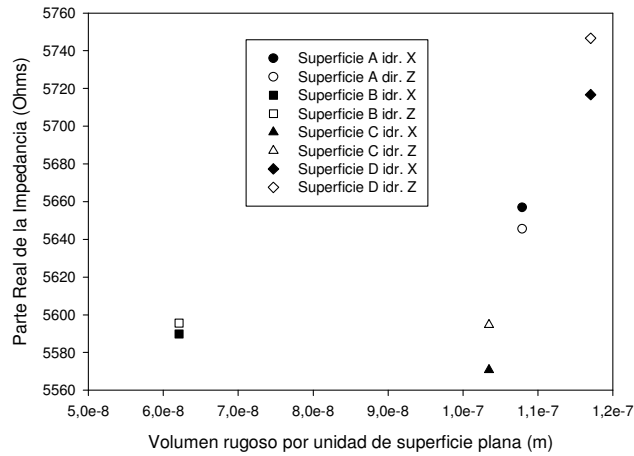


**Figura 7.60.** Representación de los valores de  $R_L/X_L$  en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana para los 4 modelos basados en imágenes AFM

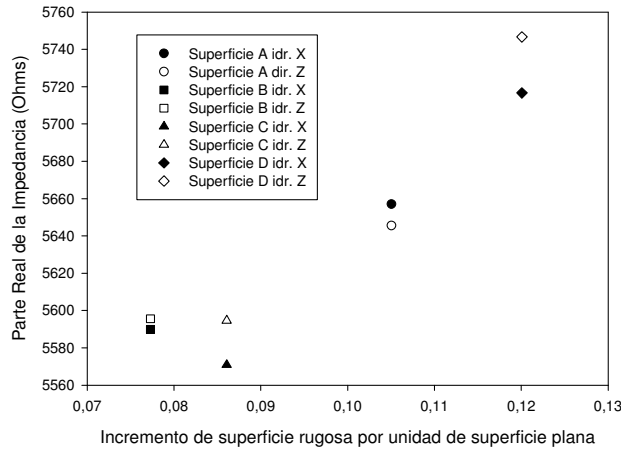
En la Figura 7.61 se representa la parte real de la impedancia acústica en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana. Existe una

tendencia creciente de  $R_L$  con el incremento de  $V_r$  que se corresponde con la teoría. Los valores de  $R_L$  generados por la superficie aleatoria parecen inferiores a los que genera una superficie regular de casquetes (Figura 7.25).

En la Figura 7. 62, se representa la parte real de la impedancia acústica en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana. Al igual que en la figura anterior se aprecia que los valores de  $R_L$  son algo inferiores al caso de la superficie regular de casquetes.



**Figura 7.61.** Representación de los valores de  $R_L$  en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana para los 4 modelos basados en imágenes AFM

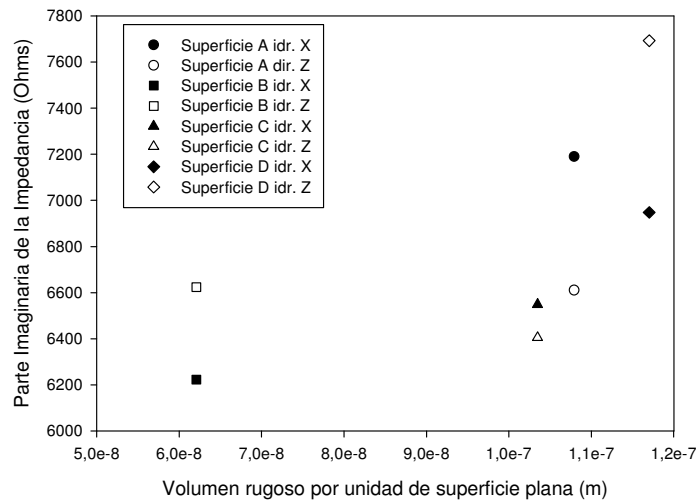


**Figura 7. 62.** Representación de los valores de  $R_L$  en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana para los 4 modelos basados en imágenes AFM



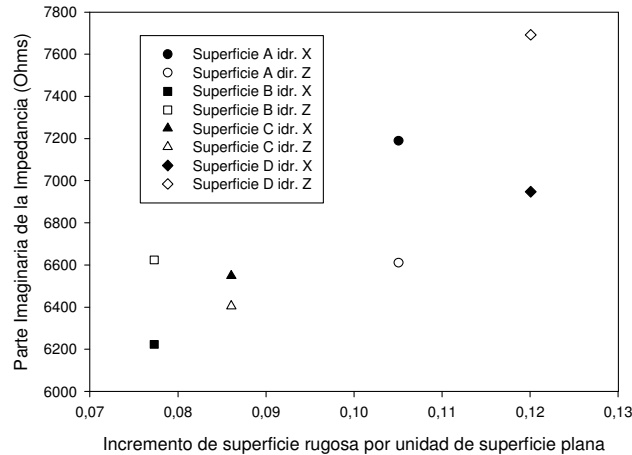
En la Figura 7.63 se representa la parte imaginaria de la impedancia acústica en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana. La tendencia de los resultados coincide con lo esperado, el incremento de  $V_r$  supone un incremento del efecto rugoso y por lo tanto un incremento de  $X_L$ . Sin embargo, los valores de  $X_L$  que genera una superficie aleatoria rugosa son un 20 o 30% inferiores a los de una superficie regular de casquetes con el mismo volumen rugoso por unidad de superficie plana como se aprecia si compara esta figura con la Figura 7.21.

En la Figura 7.64 se representa la parte imaginaria de la impedancia acústica en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana. Incrementos en el valor de  $\Delta S_r$  producen incrementos en la parte imaginaria de la impedancia. En este caso, los valores de  $X_L$  generados por las superficies aleatorias están mucho más próximos a los generados por las superficies regulares de casquetes (Figura 7.22).



**Figura 7.63.** Representación de los valores de  $X_L$  en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana para los 4 modelos basados en imágenes AFM

Si bien en algunos casos pueden existir diferencias apreciables en torno al 20 o 30%, una superficie plana con una distribución regular de casquetes proporciona valores de impedancia acústica superficial del mismo orden que una superficie aleatoria cuyos parámetros  $\Delta S_r$  y  $V_r$  coincidan con los de la superficie de casquetes. Por lo tanto, se concluye que, en determinados casos, el efecto de la rugosidad aleatoria superficial sobre la impedancia acústica de un cristal resonador de cuarzo, podría ser modelado mediante una superficie equivalente formada por un plano con la inclusión de una distribución regular de casquetes semi-esféricos.



**Figura 7.64.** Representación de los valores de  $X_L$  en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana para los 4 modelos basados en imágenes AFM

Otra característica significativa de los resultados proporcionados por las simulaciones de superficies aleatorias son las diferencias obtenidas en las magnitudes de impedancia acústica para superficies idénticas en las que solamente se varía la dirección de oscilación. En algunos casos estas variaciones son notables. Se deduce que la impedancia acústica de estas superficies aleatorias no depende exclusivamente de las magnitudes geométricas escogidas. Debe existir algún otro parámetro que relacione la geometría superficial con la dirección de oscilación.

El efecto de la dirección del movimiento oscilatorio carece de importancia en el caso de una superficie plana con la inclusión de una distribución periódica regular de casquetes semi-esféricos debido a la simetría implícita de esta geometría.

El modelo de rugosidad de Arnau extendido se basa en dicha geometría. Puede resultar interesante emplearlo ya que proporciona parámetros efectivos en los que el efecto de la dirección queda implícito.

Se propone aplicar inversamente este modelo con los resultados de las simulaciones basadas en superficies aleatorias con el fin de profundizar en el estudio del efecto de la dirección del movimiento oscilatorio en dichas superficies aleatorias. El objetivo final es el de encontrar un parámetro que describa geoméricamente el efecto en la impedancia acústica de la superficie rugosa.

### 7.8.2 Extracción de características geométricas de las superficies rugosas aleatorias mediante el modelo corregido de Arnau

En este epígrafe se estudia la posibilidad de usar modelo de Arnau extendido de forma inversa para obtener una superficie de casquetes distribuidos regularmente equivalente a las superficies aleatorias modeladas con el método de los volúmenes finitos. Se evaluará la relación existente entre los parámetros geométricos reales que definen la superficie aleatoria y los parámetros geométricos correspondientes a la superficie de casquetes equivalente.

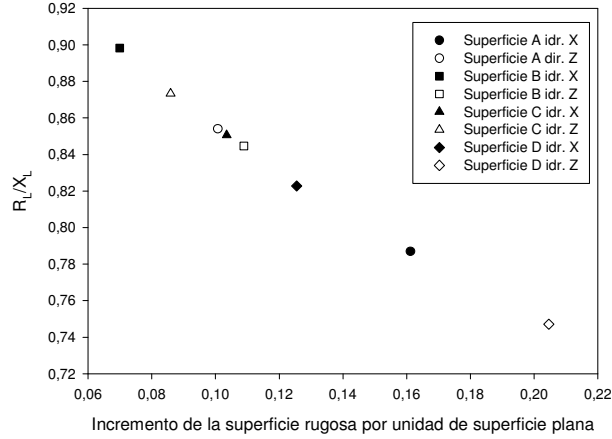
El proceso seguido es simple: a partir de los valores de impedancia acústica obtenidos por el método de los volúmenes finitos para cada una de las superficies aleatorias modeladas, se obtendrán los valores correspondientes de  $h_r$  y  $d$  por medio de la aplicación inversa del modelo de Arnau con condiciones de contorno armónicas. A partir de los valores de  $h_r$  y  $d$  obtenidos, se calcularán el resto de características geométricas como el incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana y el volumen rugoso por unidad de superficie plana.

A continuación se representan las magnitudes características de la impedancia acústica de las superficies aleatorias en función de las características geométricas extraídas usando el modelo de Arnau extendido.

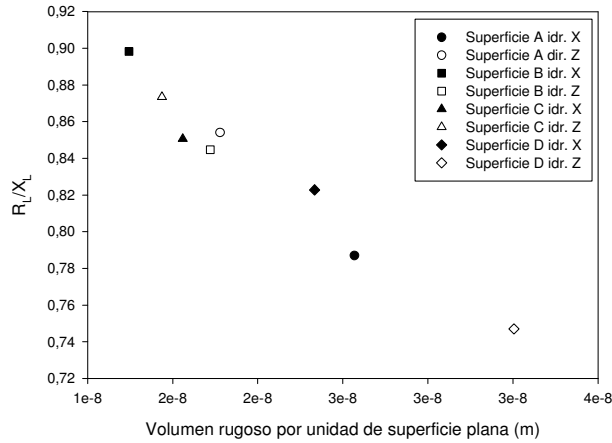
En la Figura 7.65 se representa la relación  $R_L/X_L$  en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana. Se observa que el  $\Delta S_r$  efectivo predicho por la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido al caso de superficies aleatorias sigue una dependencia lineal con la relación  $R_L/X_L$ . A cada uno de los puntos 'tipo de superficie-dirección de movimiento' le corresponde un valor de  $\Delta S_r$  distinto. Se puede apreciar, que a una misma superficie (por ejemplo la superficie A) se le asignan distintos valores de  $\Delta S_r$ , puesto que se produce una reordenación de dichos valores de  $\Delta S_r$  con respecto a los obtenidos mediante medidas de AFM (Figura 7.59) según la dirección de oscilación. A partir de ahora, se trabajará con la hipótesis de que el modelo de Arnau extendido extrae un valor efectivo de las propiedades que caracterizan geoméricamente la superficie, en el que se tiene en cuenta la superficie rugosa enfrentada a la dirección de oscilación. Por este motivo, en la Figura 7.65 se observa que para la misma superficie (p. Ej. la superficie A) se obtienen valores de  $\Delta S_r$  distintos.

En la Figura 7.66 se representa la relación  $R_L/X_L$  obtenida en las simulaciones con superficies aleatorias en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana extraídos mediante el modelo de Arnau

extendido. Se puede apreciar la reordenación de los valores de  $V_r$  obtenidos mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido con respecto a los obtenidos mediante las medidas AFM (Figura 7.60). La dependencia entre  $R_L/X_L$  y  $V_r$  no es tan lineal como en el caso de la Figura 7.65, pero la reordenación de las superficies coincide, tanto para  $\Delta S_r$  como para  $V_r$ , salvo en el caso de la superficie A oscilando en la dirección z, a la que le corresponde un valor de  $V_r$  ligeramente inferior al que cabría esperar según el  $\Delta S_r$  obtenido en la Figura 7.65.



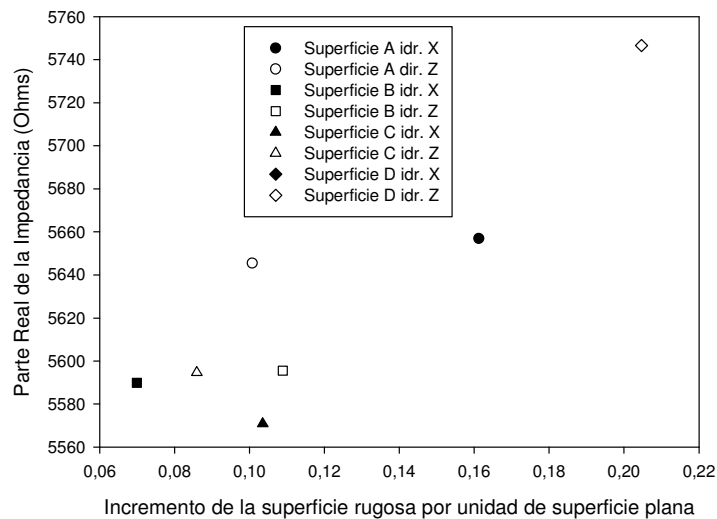
**Figura 7.65.** Representación de los resultados obtenidos en la simulación por FVM de las superficies aleatorias para  $R_L/X_L$  en función del  $\Delta S_r$  correspondiente obtenido mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido.



**Figura 7.66.** Representación de los resultados obtenidos en la simulación por FVM de las superficies aleatorias para  $R_L/X_L$  en función del  $V_r$  correspondiente obtenido mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido.

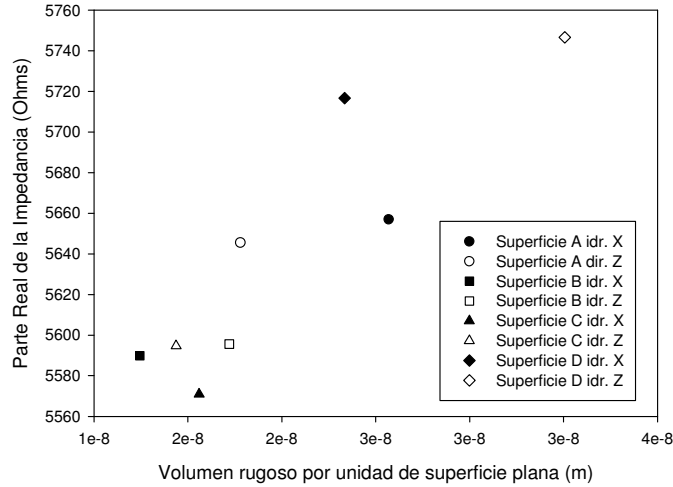
En la Figura 7.67, se representa la parte real de la impedancia acústica obtenida en las simulaciones con superficies aleatorias en función de los valores del incremento de superficie plana obtenidas mediante el modelo de Arnau. La dependencia obtenida es mucho más compleja y se aleja de la tendencia lineal. Los valores de  $\Delta S_r$  extraídos parecen razonables puesto que, en general, crecen con el valor de  $R_L$ .

En la Figura 7.68 se representa  $R_L$  obtenida en las simulaciones de superficies aleatorias en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana extraído mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau. También se observa una tendencia compleja alejada de la linealidad, pero al igual que en el caso anterior, los valores extraídos parecen razonables. Generalmente, cuanto mayor es  $R_L$  mayor es el efecto rugoso y por lo tanto mayor el valor de  $V_r$  extraído.

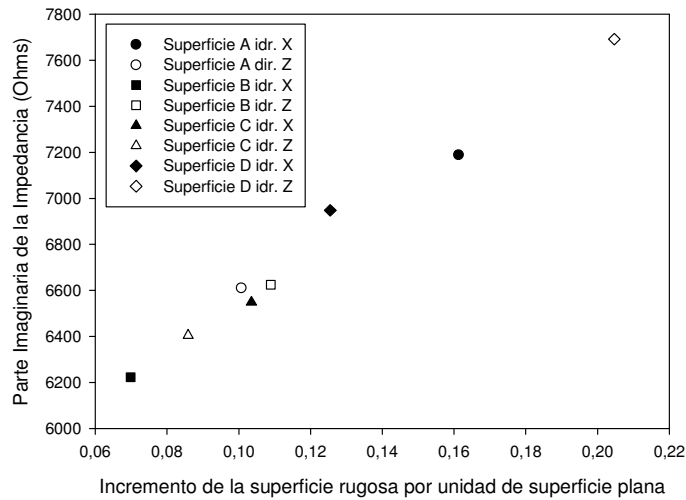


**Figura 7.67.** Representación de los resultados obtenidos en la simulación por volúmenes finitos de las superficies aleatorias para  $R_L$  en función del incremento de la superficie rugosa por unidad de superficie plana correspondiente obtenido mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido.

En la Figura 7.69 se representa la parte imaginaria de la impedancia acústica obtenida en las simulaciones con superficies aleatorias en función del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana obtenido mediante el modelo de Arnau. Se aprecia que la tendencia de la curva es mucho más regular que para el caso de la parte real de la impedancia acústica (Figura 7.67).

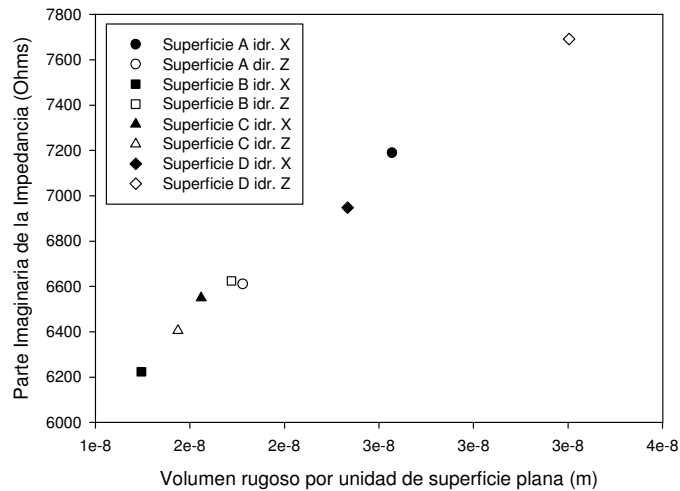


**Figura 7.68.** Representación de los resultados obtenidos en la simulación por volúmenes finitos de las superficies aleatorias para  $R_L$  en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana correspondiente obtenido mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido.



**Figura 7.69.** Representación de los resultados obtenidos en la simulación por volúmenes finitos de las superficies aleatorias para  $X_L$  en función del incremento de la superficie rugosa por unidad de superficie plana correspondiente obtenida mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido.

En la Figura 7.70 se representa la parte imaginaria de la impedancia acústica obtenida en las simulaciones con superficies aleatorias en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana obtenido mediante el modelo de Arnau. Se observa también una tendencia más regular que para el caso de la parte real de la impedancia acústica (Figura 7.68).



**Figura 7.70.** Representación de los resultados obtenidos en la simulación por volúmenes finitos de las superficies aleatorias para  $X_L$  en función del volumen rugoso por unidad de superficie plana correspondiente obtenido mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido.

Tras analizar los resultados proporcionados por la aplicación inversa del modelo de Arnau corregido a los valores de impedancia acústica de las superficies aleatorias previamente simuladas mediante el método de los volúmenes finitos, se llega a la conclusión de que dicho modelo predice unas características geométricas de la rugosidad ( $\Delta S_r$  y  $V_r$ ) en las que el efecto de la dirección de oscilación se tiene en cuenta de manera efectiva. Es decir, el modelo de Arnau extendido se puede aplicar de manera inversa para, a partir de las medidas de impedancia acústica de una superficie aleatoria, encontrar una superficie equivalente de casquetes regularmente distribuidos, tal que sus características geométricas ( $\Delta S_r$  y  $V_r$ ) coincidan con las características geométricas de la superficie aleatoria original que contribuyen a la impedancia acústica. Esta afirmación no quiere decir que el incremento de superficie rugosa y el volumen rugoso de la superficie aleatoria y de su superficie equivalente de casquetes deban coincidir, sino que los parámetros obtenidos mediante el modelo de Arnau deberían estar correlacionados con algún parámetro de la superficie aleatoria que

cuantifique la proyección de la geometría superficial que contribuye al efecto rugoso.

Para corroborar esta afirmación es necesario encontrar dicho parámetro geométrico de la superficie real.

### 7.8.3 Extracción de características geométricas de las superficies rugosas aleatorias mediante la aplicación del modelo empírico y correlación con el modelo extendido de Arnau

En este epígrafe se aplica el modelo empírico del efecto rugoso descrito en 7.5 para extraer los parámetros geométricos equivalentes de las superficies aleatorias. El objetivo principal es el de comparar los resultados obtenidos con los proporcionados por la aplicación inversa del modelo de Arnau extendido.

Mediante las ecuaciones (7.4) y (7.5) se obtienen los valores de  $\Delta S_r$ , y  $V_r$ , a partir de las magnitudes propias de la impedancia acústica de las superficies aleatorias  $R_L/X_L$  y  $X_L$ .

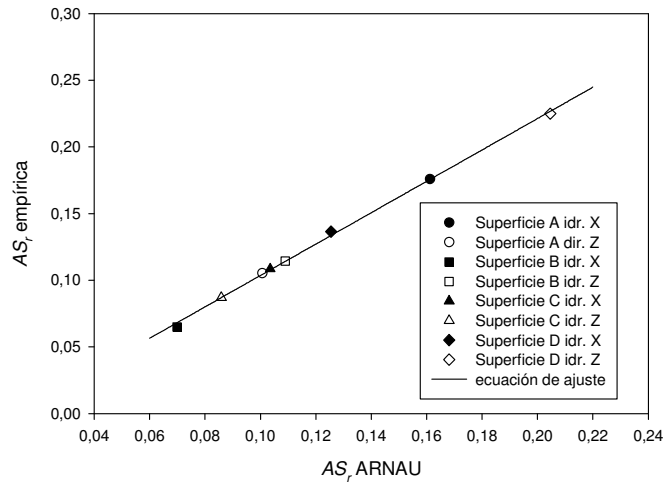
Los resultados obtenidos se muestran en la Figura 7.71 y en la Figura 7.72. En el eje de ordenadas de la Figura 7.71 se representa el incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana obtenido mediante la aplicación del modelo semi-empírico del efecto rugoso a la relación  $R_L/X_L$  de las superficies aleatorias, mientras que en el eje de abscisas se representa el incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana previamente obtenido mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau corregido a estas mismas superficies aleatorias. Se ha incluido una recta de ajuste para simplificar la visualización de los resultados. El coeficiente de correlación de esta recta es  $R^2=0,9988$  lo que implica una correlación casi perfecta entre los dos modelos. La recta de ajuste responde a la ecuación (7.12).

$$\Delta S_r^{empirico} = 1,1776 \cdot \Delta S_r^{ARNAU} - 0,0141 \quad (7.12)$$

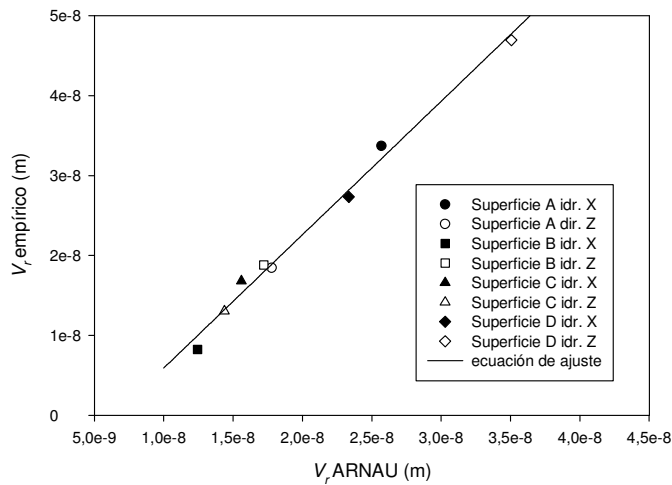
En la Figura 7.72 se representan el volumen rugoso por unidad de superficie plana obtenido mediante la aplicación del modelo semi-empírico en el eje de ordenadas y el volumen rugoso por unidad de superficie plana obtenido mediante la aplicación del modelo de Arnau corregido en el eje de abscisas. También se incluye una recta de ajuste con el fin de facilitar la interpretación de los resultados. El coeficiente de correlación de dicha recta es  $R^2=0,9905$  y su ecuación característica la (7.13).

$$V_r^{empirico} = 1,6692 \cdot V_r^{ARNAU} - 1 \cdot 10^{-8} \quad (7.13)$$





**Figura 7.71.** Correlación entre el incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana obtenido mediante la aplicación inversa del modelo extendido de Arnau y el modelo puramente empírico



**Figura 7.72.** Correlación entre el incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana obtenido mediante la aplicación inversa del modelo extendido de Arnau y el modelo puramente empírico

Tras realizar la correlación de ambos modelos se concluye que los resultados proporcionados por ambos son muy similares. Las correlaciones para el parámetro  $\Delta S_r$ , así como para el parámetro  $V_r$  son prácticamente la unidad. En el caso del incremento de superficie rugosa por unidad de

superficie plana, el modelo empírico proporciona valores ligeramente superiores (en torno a un 17%), con un offset de aproximadamente 0,014. Si nos centramos en el caso del volumen rugoso, el modelo empírico predice unos valores aproximadamente un 67% superiores a los predichos por el modelo de Arnau. Esta diferencia se debe a que mientras que en el modelo de Arnau corregido se tiene en cuenta el efecto de interferencia entre casquetes, en el modelo empírico no se ha tenido en cuenta para realizar el ajuste a los resultados de las simulaciones de volúmenes finitos con superficies basadas en distribuciones regulares de casquetes. Así, como se comenta en el epígrafe 7.5 en el que se describe el modelo, para calcular la recta de ajuste que relaciona la parte imaginaria de la impedancia acústica con el volumen rugoso, se obvia la contribución de los puntos en los que resulta patente el efecto de interferencia.

#### **7.8.4 Correlación de los parámetros extraídos mediante la aplicación del modelo corregido de Arnau con los parámetros geométricos reales AFM.**

Como se ha mencionado al final del epígrafe 7.7.2, para comprobar que los resultados obtenidos mediante el modelo de Arnau corregido caracterizan adecuadamente una superficie aleatoria, es necesario encontrar un parámetro geométrico medible mediante técnicas alternativas que tenga una buena correlación con dichos parámetros.

La bibliografía [Zhang98], es clara en el sentido de que la proyección de una superficie rugosa oscilante en el plano perpendicular a la dirección del movimiento es determinante en el efecto rugoso sobre la impedancia acústica de dicha superficie. A su vez, el efecto inercial del volumen rugoso sobre la impedancia acústica está determinado por la dirección del movimiento de la superficie que lo limita. Una misma superficie oscilando en dos direcciones distintas puede producir valores de impedancia muy diferentes.

El objetivo por tanto, es calcular de algún modo la proyección de la superficie en el plano perpendicular a la dirección del movimiento de las superficies aleatorias medidas con el microscopio de fuerzas atómicas. Es decir, la superficie enfrentada al líquido en función de la dirección de oscilación. Una vez construidos los modelos tridimensionales de las superficies aleatorias a partir de las imágenes AFM y mallados mediante el paquete software de modelado numérico ANSYS®, es posible calcular el porcentaje de superficie rugosa que se proyecta en la dirección del movimiento.

El programa ANSYS© permite calcular el vector unitario normal a cada uno de los nodos de la superficie rugosa mallada. Asimismo, es posible conocer las componentes de este vector referenciadas al sistema de coordenadas cartesiano usado en las simulaciones. Se ha calculado la media del valor absoluto de las componentes  $x$ ,  $z$  del vector unitario normal en todos los nodos que forman parte de la superficie rugosa para cada uno de los modelos: A, B, C, D. Se han tomado estas componentes puesto que son las que coinciden con las direcciones de oscilación que se han utilizado en las simulaciones. Se ha utilizado el valor absoluto de las componentes del vector normal unitario porque el sentido de éstas no es significativo en el cálculo de la superficie enfrentada a la dirección del movimiento. Tanto el sentido positivo como el sentido negativo contribuyen igualmente a la superficie enfrentada al líquido.

A continuación, se han normalizado las componentes medias  $x$ ,  $z$  calculadas utilizando el módulo de la proyección del vector normal unitario en el plano XZ. De esta manera se ha obtenido un valor relativo del peso de las componentes en el plano. Finalmente, el valor de las componentes normalizadas se multiplica por la superficie rugosa propia de cada modelo.

Todo este proceso ha servido para calcular el parámetro  $\alpha$  tal y como se muestra en la ecuación (7.14). Donde  $\overline{u_i}$  es la media del valor absoluto de la componente  $i$ , que puede ser  $x$  ó  $z$  y  $\left| \overline{u_{xz}} \right|$  es el módulo de la proyección del vector normal unitario en el plano XZ.

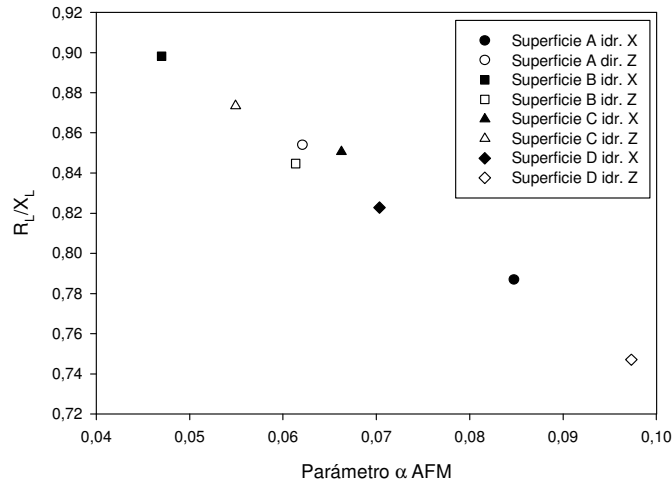
$$\alpha = \frac{\overline{u_i}}{\left| \overline{u_{xz}} \right|} \Delta S_r \quad (7.14)$$

Por lo tanto, el parámetro  $\alpha$  no es más que el incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana multiplicada por un coeficiente que estima el porcentaje de dicha superficie enfrentada a la dirección de oscilación.

En la Tabla 7.7 se muestran los valores de la media del valor absoluto de la componente paralela a la dirección de oscilación del vector normal unitario, el módulo de la proyección del vector unitario sobre el plano XZ y el parámetro  $\alpha$  calculado.

En la Figura 7.73 se representa la relación  $R_L/X_L$  en función del parámetro  $\alpha$  de superficie rugosa proyectada en el plano perpendicular a la dirección del movimiento que se acaba de describir. Se puede apreciar claramente que a diferencia de lo que sucedía con los parámetros  $\Delta S_r$  y  $V_r$  (Figura 7.59 y Figura 7.60), calculadas a partir de medidas de microscopía de fuerzas atómicas, a la misma superficie le corresponden valores de  $\alpha$

diferentes en función de la dirección de oscilación. Se observa que para valores crecientes del parámetro  $\alpha$ , es decir, para incrementos de la superficie rugosa proyectada en la dirección del movimiento el valor de  $R_L/X_L$  disminuye con una tendencia aproximadamente lineal.



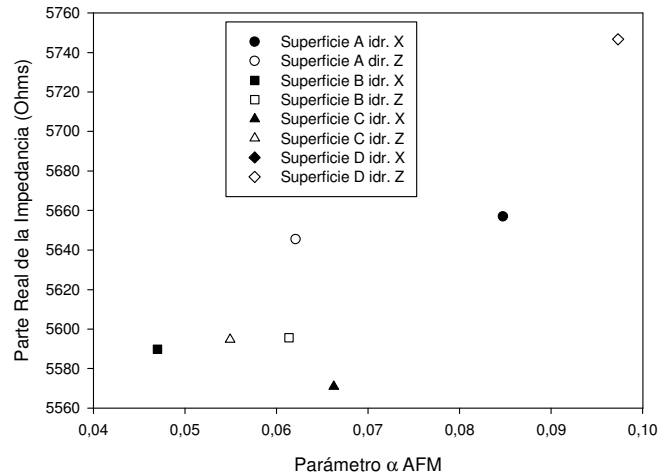
**Figura 7.73.** Representación de la relación  $R_L/X_L$  obtenidas en las simulaciones de superficies geométricas en función del parámetro  $\alpha$  de superficie rugosa proyectada en la dirección del movimiento.

En la Figura 7.74 se representa la parte real de la impedancia acústica en función del parámetro  $\alpha$  AFM. No se aprecia una tendencia tan clara como en la figura anterior pero se manifiesta una tendencia al crecimiento de  $R_L$  con el incremento de  $\alpha$ .

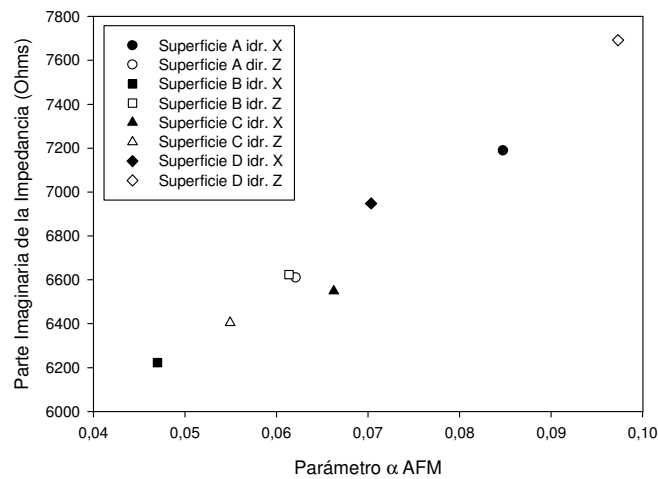
**Tabla 7.7.** Valores de la media del valor absoluto de la componente paralela a la dirección de oscilación del vector normal unitario, el módulo de la proyección del vector unitario sobre el plano XZ y el parámetro  $\alpha$  calculado.

Superficie	$\overline{u_i}$	$ \overline{u_{xz}} $	$\alpha$
A (oscilación X)	0,19664	0,24378023	8,47E-02
B (oscilación X)	0,10293	0,16928541	4,70E-02
C (oscilación X)	0,15269	0,19833734	6,63E-02
D (oscilación X)	0,12066	0,20597402	7,03E-02
A (oscilación Z)	0,14407	0,24378023	6,21E-02
B (oscilación Z)	0,13439	0,16928541	6,14E-02
C (oscilación Z)	0,12657	0,19833734	5,49E-02
D (oscilación Z)	0,16692	0,20597402	9,73E-02

En la Figura 7.75 se representa la parte imaginaria de la impedancia en función del parámetro  $\alpha$  AFM. Se observa que el valor de  $X_L$  crece con el valor de  $\alpha$ . Es decir, que el valor de la parte imaginaria de la impedancia acústica se incrementa con el valor de superficie rugosa proyectada en el plano perpendicular a la dirección del movimiento.



**Figura 7.74.** Representación de  $R_L$  obtenidas en las simulaciones de superficies geométricas en función del parámetro  $\alpha$  de superficie rugosa proyectada en la dirección del movimiento.



**Figura 7.75.** Representación de la relación  $X_L$  obtenidas en las simulaciones de superficies geométricas en función del parámetro  $\alpha$  de superficie rugosa proyectada en la dirección del movimiento.

A continuación se realizará un estudio de correlación entre los valores del parámetro  $\alpha$  obtenido a través de medidas AFM y los parámetros obtenidos mediante la aplicación inversa del modelo de Arnau sobre los valores de impedancia acústica de las simulaciones de volúmenes finitos realizadas. El objetivo principal es el de comprobar si los valores de  $\Delta S_r$  y  $V_r$  que proporciona el modelo de Arnau extendido predicen magnitudes geométricas reales y tangibles de la superficie rugosa.

Con el fin de comparar mejor magnitudes semejantes, se ha calculado el valor de la superficie proyectada en el plano perpendicular a la dirección del movimiento para las distribuciones regulares de casquetes equivalentes que proporciona el modelo de Arnau extendido. Esta magnitud es análoga al parámetro  $\alpha$  y se obtiene mediante la ecuación (7.15). Por ello, a partir de ahora se usará esta magnitud en lugar de  $\Delta S_r$  para realizar la correlación con  $\alpha$ . Se hace notar que esta magnitud es simplemente  $\Delta S_r$  multiplicada por una constante (concretamente  $1/2$ ) y que por lo tanto no afecta al análisis de correlación. Es decir, los índices de correlación que se obtienen entre  $\alpha$  y  $\Delta S_r$  ó  $\alpha$  y  $\Delta S_r^{proy}$  son exactamente iguales, la única diferencia es la relación de proporcionalidad.

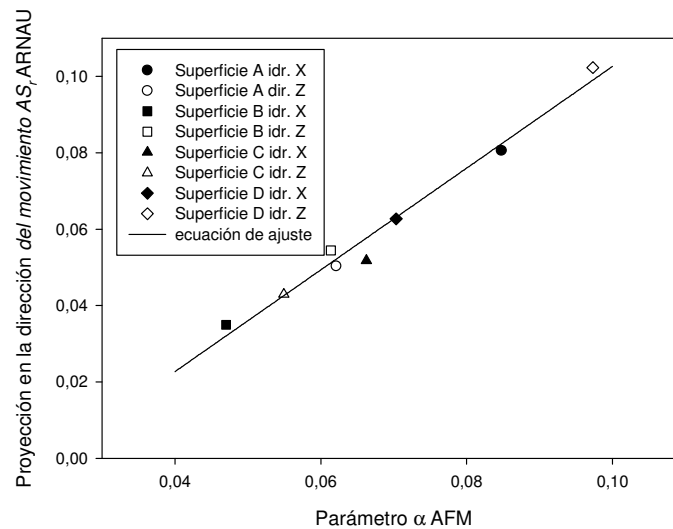
$$\Delta S_r^{proy} = \frac{\pi h_r^2}{2S_q} = \frac{\Delta S_r}{2} \quad (7.15)$$

En el eje de ordenadas de la Figura 7.76 se representa la proyección en plano perpendicular a la superficie del movimiento del incremento de superficie rugosa predicho por el modelo de Arnau extendido ( $\Delta S_r^{proy}$ ) para las 8 simulaciones realizadas con superficies aleatorias. En el eje de abscisas de esta figura se representa el parámetro  $\alpha$  calculado a partir de las medidas AFM de las mismas 8 simulaciones con superficies aleatorias. Para facilitar la visualización, se ha incluido una recta de ajuste. Se puede apreciar que la correlación es casi perfectamente lineal, obteniéndose un  $R^2=0,9786$ . Este resultado es muy importante, puesto que implica que aplicando el modelo de Arnau extendido es posible relacionar dos magnitudes características de una superficie rugosa aleatoria obtenidas por técnicas analíticas completamente diferentes (microbalanza de cuarzo y microscopia de fuerzas atómicas). En la ecuación (7.16) se describe la recta de ajuste. Analizándola se aprecia que la superficie rugosa proyectada en la dirección del movimiento predicha por el modelo de Arnau es aproximadamente un 33% mayor que la calculada mediante AFM. Asimismo, se observa que existe un pequeño offset de 0,0306.

$$\Delta S_r^{proy} = 1,3322 \cdot \alpha - 0,0306 \quad (7.16)$$

En la Figura 7.77 se representa la correlación entre el volumen rugoso por unidad de superficie plana predicho por el modelo de Arnau para las simulaciones realizadas con superficies aleatorias y parámetro  $\alpha$  AFM. Se observa que también existe una correlación lineal muy definida con un  $R^2=0,9263$ . Este índice de correlación es inferior al obtenido para  $\Delta S_r^{proy}$ , pero a pesar de ello, implica que el parámetro  $\alpha$  y el volumen rugoso por unidad de superficie están relacionados. Se ha incluido una recta de ajuste en la Figura 7.77 cuya ecuación es (7.17).

$$V_r^{ARNAU} = 4 \cdot 10^{-7} \cdot \alpha - 1 \cdot 10^{-8} \quad (7.17)$$

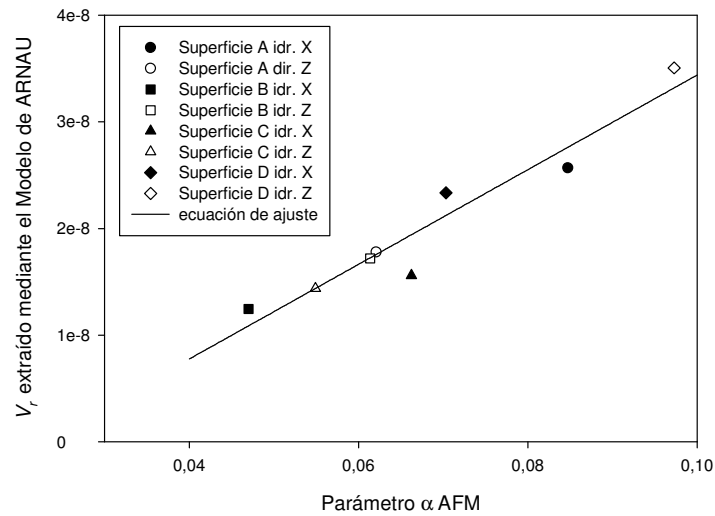


**Figura 7.76.** Correlación entre la proyección en la dirección del movimiento del incremento de superficie rugosa por unidad de superficie plana proporcionado por el modelo de Arnau extendido y el parámetro  $\alpha$  de superficie rugosa proyectada en la dirección del movimiento calculado mediante los datos AFM.

En este epígrafe se encuentra el resultado más importante de la tesis. Se demuestra que la contribución a la impedancia acústica de una superficie rugosa aleatoria puede ser modelada por medio de una superficie equivalente compuesta por una superficie plana con la inclusión de una distribución de casquetes semi-esféricos regularmente distribuidos.

Asimismo, se demuestra que el modelo de Arnau corregido predice valores característicos de la geometría de superficies rugosas aleatorias a partir de medidas de impedancia acústica que se correlacionan con un  $R^2=0,9786$  en el caso del incremento de superficie rugosa y con un

$R^2=0,9263$  en el caso del volumen rugoso, con magnitudes que caracterizan la superficie obtenidas por medio de microscopía de fuerzas atómicas.



**Figura 7.77.** Correlación entre volumen rugoso por unidad de superficie plana proporcionado por el modelo de Arnau extendido y el parámetro  $\alpha$  de superficie rugosa proyectada en la dirección del movimiento calculado mediante los datos AFM.



## 8. Futuras líneas

Se plantean las siguientes futuras líneas de investigación:

- Realización de un estudio comparativo entre el efecto que tiene sobre la respuesta del sensor la consideración de capas rugosas viscoelásticas y el efecto que tiene la consideración de capas rígidas. Este estudio podría ser realizado aprovechando los modelos numéricos desarrollados en esta tesis, que deberían ser modificados para incluir propiedades viscoelásticas.
- Diseño y realización de una campaña experimental específica para estudiar el fenómeno observado en los resultados numéricos obtenidos en esta tesis por el cual, en el caso de superficie de casquetes de radios inferiores a la profundidad de penetración se obtienen valores de  $R_L$  inferiores a los predichos por Kanazawa para una superficie plana. Confirmar si se trata de un fenómeno físico real o de un error numérico propio de los modelos empleados.



## 9. Conclusiones

Las conclusiones de la tesis son las siguientes:

- Se ha realizado un extenso estudio del estado del arte de las investigaciones que profundizan en modelos del efecto de la rugosidad superficial en la respuesta acústica del cristal resonador de cuarzo. Dicho estudio se ha centrado especialmente en el modelo de rugosidad de Arnau. Este modelo ha sido analizado numéricamente con el objetivo de detallar su comportamiento y comprobar su validez.
- Se ha aplicado el modelo de rugosidad de Arnau para analizar los resultados experimentales obtenidos en la monitorización de la electropoli-merización del polímero conductor PEDOT (Poli (3,4-etilendioxitiofeno)). En particular, se estudia la rugosidad superficial de éste recubrimiento polimérico electropolimerizado así como su efecto sobre los valores efectivos de las propiedades físicas de dicho polímero.
- Se ha propuesto una corrección al modelo de Arnau para incluir el efecto de interferencia entre casquetes que no fue tenido en cuenta en su planteamiento original. Para ello, se han aplicado condiciones de contorno armónicas utilizando una modificación de las soluciones periódicas fundamentales para la ecuación de Navier-Stokes. La complejidad del desarrollo matemático resultante ha impedido obtener una expresión analítica cerrada, pero ha permitido profundizar en la comprensión del fenómeno interferente y ha servido como punto de partida para el ajuste del modelo de Arnau mediante una corrección semi-empírica.
- Se ha simulado el comportamiento de superficies rugosas formadas por distribuciones regulares de casquetes semi-esféricos sobre una superficie plana mediante el método de los volúmenes finitos con el objetivo de analizar qué parámetros pueden representar de forma óptima la contribución rugosa sobre la impedancia acústica del sensor. Se ha propuesto un modelo empírico del efecto rugoso basado en los resultados de este estudio. Asimismo, se han utilizado dichos resultados, junto con el desarrollo matemático previamente descrito, para proponer una modificación del modelo de Arnau que incluya los efectos interferentes de los casquetes vecinos.
- Se ha aplicado el modelo de Arnau con la inclusión del efecto de interferencia de casquetes vecinos en el estudio del comportamiento del efecto rugoso en superficies aleatorias. Se ha demostrado que el efecto de la rugosidad de una superficie aleatoria en la impedancia acústica puede ser modelado por la respuesta de una superficie equivalente formada por

una distribución regular de casquetes semi-esféricos sobre una superficie plana. Asimismo, se ha demostrado que los parámetros geométricos de esta superficie equivalente están linealmente correlacionados con la proyección de la superficie aleatoria real en la dirección del movimiento. Esta afirmación se ha comprobado mediante medidas experimentales con microscopio de fuerza atómica (AFM).

- Aunque no era un objetivo contemplado inicialmente, se han desarrollado modelos completos de sensores piezoeléctricos (QCM, LFE) basados en el método de los elementos finitos que permiten estudiar su respuesta mecánica y eléctrica tanto en el dominio temporal como en el frecuencial.

## 10. Bibliografía

- [Bender78] C.M. Bender and S.A. Orszag “Advanced Mathematical Methods for Scientists and Engineers: Asymptotic Methods and Perturbation Theory” (1978). Ed. McGraw-Hill
- [Aaltosalmi05] AaltoSalmi “Fluid Flow in Porous Media with the Lattice-Boltzmann Method U” Department of Physics. University of Jyväskylä. Research report No. 3 (2005)
- [Allik70] Allik, H., and Hughes J. R. “Finite Element for Piezoelectric Vibration” International Journal Numerical Methods of Engineering, No. 2, pp. 151-157 (1970)
- [Ansys11] Ansys CFX-Solver, Release 11.0: Theory. Ansys Inc.
- [Arias99] A.C. Arias, M. Granström, D.S. Thomas, K. Petritsh, R.H. Friend, *Phys. Rev.*, **60** 1854 (1999)
- [Arnau04] Arnau, A. Editors: “Piezoelectric Transducers and Applications”, *Springer-Verlag, (Berlin). 1ª Ed 2004 (Cap. 1 y 16).*
- [Arnau05] A. Arnau, Y. Jiménez, R. Fernández, *345<sup>th</sup> Wilhelm und Else Heraeus Seminar: Acoustic Wave Based Sensors: Fundamentals, Concepts, New Applications (AWSW5).*, Bad Honnef, Germany, April 11-13 (2005)
- [Arnau05] A. Arnau, Y. Jiménez, R. Fernández, *345<sup>th</sup> Wilhelm und Else Heraeus Seminar: Acoustic Wave Based Sensors: Fundamentals, Concepts, New Applications (AWSW5).*, Bad Honnef, Germany, April 11-13 (2005)
- [Arnau99] A. Arnau, “El Cristal de Cuarzo como Sensor Microgravimétrico en Medios Amortiguados (TOMOS 1 y 2)”, ;*Tesis Doctoral*, 1999.
- [Atanasoff41] Atanasoff J V and Hart P J “Dynamical determination of the elastic constants and their temperature coefficients for quartz”, *Phys. Rev.* **59** 85-96 (1941)

- [Ballato85] Ballato A, Hatch E, Mizan M, Lukaszek T R and Tilton R “Simple Thickness Plate Modes Driven by Lateral Fields” *Proc. Annual Frequency Control Symp.* 462-72 (1985)
- [Ballato86] Ballato A, Hatch E, Mizan M and Lukaszek T J. “Lateral Field Equivalent Networks and Piezocoupling Factors of Quartz Plates Driven in Simple Thickness Modes” *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **33**(4) 385-93 (1986)
- [Bandey97] H. L. Bandey, A. R. Hillman, M. J. Brown, S. J. Martin, *Faraday Discuss*, **107**, 105 (1997)
- [Bandey99] Bandey, H.L., Martin, S.J., Cernosek, R.W.: “Modeling the Responses of Thickness-Shear Mode Resonators under Various Loading Conditions”, *Anal. Chem.*, vol. 71, pp. 2205-2214, 1999.
- [Beaver68] W. D. Beaver “Analysis of Elastically Coupled Piezoelectric Resonators” *J. Acous. Soc. Of America*, vol. 43, n. 5 (1968)
- [Bechmann65] Bechmann R H. “Piezoelectric Crystal Apparatus” *U. S. Patent 3,165,651.* (1965)
- [Beck92] R. Beck et al. “Influence of the Surface Microstructure on the Coupling Between a Quartz Oscillator and a Liquid” *J. Electrochem. Soc.* Vol. 139, No. 2. 1992
- [Behling99] Behling, C., Lucklum, R., Hauptmann, P. “Fast Three-Step Method for Shear Moduli Calculation from Quartz Crystal Resonator Measurements”, *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect. Freq. Contr.*, vol. 46, n° 6, pp. 1431-1438, 1999.
- [Born40-1] M. Born, R.D.Misra. “On the stability of Crystal Lattices II” *Proc. Camb. Phil. Soc.* Vol.36, pp. 173 (1940)
- [Born40-2] M. Born, R.D.Misra. “On the stability of Crystal Lattices IV” *Proc. Camb. Phil. Soc.* Vol.36, pp. 466 (1940)
- [Borwein98] J. M. Borwein, P. B. Borwein “Pi and the AGM. A Study in Analytic Number Theory and Computational Complexity” *Canadian Mathematical Society. Series of Monographs and Advanced Texts.* Vol. 4 (1998)

- 
- [Bottom82] V. G. Bottom. "Introduction to Quartz Crystal Unit Design" Van Nostrand Reinhold Company. (1982)
- [Brickman47] Brickman, H.C.: *Appl.Sci.Res. A*, vol. 27, pp. 1, 1947.
- [Bruckensteis94] S. Bruckestein et al. Dual Quartz Crystal Microbalance Compensation using a Submerged Reference Crystal. Effect of Surface Roughness and Liquid Properties. *J. Electroanalytical Chemistry*, 370, 189-195. 1994
- [Buckin01] Buckin V., Kudryashov E.: "Ultrasonic Shear Wave Rheology of Weak Particle Gels", *Advances in Colloid and Interface Science*, vol. 89, n° 90, pp. 401-422, 2001.
- [Buckin01] Buckin V., Kudryashov E.: "Ultrasonic Shear Wave Rheology of Weak Particle Gels", *Advances in Colloid and Interface Science*, vol. 89, n° 90, pp. 401-422, 2001.
- [Bund02] Bund A., Schneider, M., *Journal of The Electrochemical Society*, **149**, 331 (2002)
- [Bund04] Bund A., *J. Solid State Electrochem*, **8**, 182 (2004)
- [Burgers41] Proc. K. Akad. Wet. Ams. No. 44, pp. 1045-1174 (1941)
- [Buttry91] Buttry, D.A.: "The Quartz Crystal Microbalance as an situ tool in electrochemistry", In: Abruña, I.D. (ed.), *Electrochemical interfaces: modern technique for in-situ interface characterization*, VCH, 1991.
- [Cady64] Piezoelectricity. An Introduction to the Theory and Applications of Electromechanical Phenomena in Crystals. Vol. II. W. G. Cady. Dover Publications INC. (1964)
- [Calvo97] Calvo, E.J., Etchenique, R., Barlett, P.N., Singhal, K., Santamaria, C.: "Quartz Crystal Impedance Studies at 10MHz of Viscoelastic Liquids and Films", *Faraday Discuss.*, vol. 107, pp. 141-157, 1997.
- [Cerutti86] E. Cerutti, R. Kinney, M. Paolino. "Numerical Predictions for Unsteady Viscous Flow Past an Array of Cylinders" *Int. Jour. Num. Meth. in Fluids* Vol. 6, pp 715-731 (1986)

- [Chapman92] A. M. Chapman, J. J. L. Higdon. "Oscillatory Stokes Flow in Periodic Porous Media" *Phys. Fluids A*, Vol. 4, 2099-2116
- [Charlaix88] Charlaix, E.; Kushnick, A.P; Stokes, J.P.;"All-Polymer Resistor Circuits Fabricated with Inkjet Printing Technology", *Physical Review Letters.*, vol. 61, nº 14 pp. 1595, 1988.
- [Cheng97] H. Cheng, G. Papanicolau. "Flow Past Periodic Arrays of Spheres at Low Reynolds Number". *J. Fluid. Mech.* No. 335, pp. 189-212 (1997)
- [Courant53] R.Courant, D.Hilbert. "Methods of Mathematical Physics", Vol. 1, New York, Interscience. (1953)
- [Daikhin02] Daikhin, L., Gileadi, E., Katz, G., Tsionsky, V., Urbakh, M., Zagidulin, D., *Anal. Chem.*, **74**, 554 (2002)
- [Daikhin96] L. Daikhin, M. Urbakh, *Langmuir*, vol. 12, pp. 6354-6360, 1996
- [Daikhin97] L. Daikhin, M. Urbakh, *Faraday Discuss*, vol. 107, pp.27-38, 1997
- [Dewar06] R. Dewar et al. Practical Considerations of the QCM as a Viscosimeter within the Food Industry:Performance Deterioration with Repeated Use and Surface Roughness. *J. Food. Eng.* 75, 461-468. 2006
- [DiNatale00] C. Di Natale, *Sensors and Actuators B.*, vol. 64, 1-3, pp. 15-22, 2000
- [Edmonds80] Edmonds, T.E., West, T.S.: "A Quartz Crystal Piezoelectric Device for Monitoring Organic Gaseous Pollutants", *Analytica Chimica Acta*, vol. 117, pp 147-157, 1980.
- [Efimov06] Efimov, A. R. Hillman, J. W. Schultze. „Sensitivity Variation of the Electrochemical Quartz Crystal Microbalance in Response to Energy Trapping I", *Electrochimica Acta* vol. 51, pp. 2572-2577 (2006)
- [Etchenique00] Etchenique, R., Brudny, V.L, *Langmuir*, **16**, 5064 (2000)
- [Ewald21] P.P. Ewald. „Evaluation of Optical and Electrostatic Lattice Potentials" *Ann. Phys.* Vol. 64, pp.253-287 (1921)



- 
- [Fernandez86] J. A. Fernández Viña, E. Sánchez Mañes. “Ejercicios y Complementos de Análisis Matemático II”. Ed. Tecnos (1986)
- [Ferrante94] Ferrante, F., Kipling, A.L., Thompson, M.: “Molecular Slip at the Solid-Liquid Interface of an Acoustic-Wave Sensor”, *J. Appl. Phys.*, vol. 76, nº 6, pp 3448-3462, 1994.
- [George96] P. George. “Automatic Mesh Generation and Finite Element Computation” Handbook of Numerical Analysis Vol. IV. Ed. P. Ciarlet, J. Lions. Elsevier Science. (1996)
- [George98] Delaunay Triangulation and Meshing. Application to Finite Elements. P. George, H. Borouchaki. Ed. Hermes (1998)
- [Goenendaal00] L. Goenendaal, F. Jonas, D. Freitag, H. Pielartzik and J. R. Rynolds, *Adv. Mater.*, **12**, 481 (2000)
- [Graham02-1] D. R. Graham, J. L. Higdon. “Oscillatory Forcing of Flow through Porous Media” Part 1: Steady Flow. *J. Fluid Mech.* Vol. 465, pp. 213-235 (2002)
- [Graham02-2] D. R. Graham, J. L. Higdon. “Oscillatory Forcing of Flow through Porous Media”. Part 2: Unsteady Flow. *J. Fluid Mech.* Vol. 465, pp. 237-260 (2002)
- [Granstaff94] V.E. Granstaff and S.J. Martin, *J. Appl. Phys.*, **75**, 1319 (1994)
- [Guilbault81] Guilbault, G.G., Affolter, J.: “Piezoelectric Crystal Coating for Detection of Organophosphorus Compounds”, *Analytical Chemistry*, vol. 53, pp. 2057-2060, 1981.
- [Guilbault83] Guilbault, G.G.: “Determination of Formaldehyde with an Enzyme-Coated Piezoelectric Crystal Detector”, *Analytical Chemistry*, vol. 55, nº 11, pp. 1662-1684, 1983.
- [Guilbault85] Guilbault, G.G., Kristoff, J.: “Detection of Organophosphorus Compounds with a Coated Piezoelectric Crystal”, *Analytical Chemistry*, vol. 57, pp. 1754-1756, 1985.
- [Hasimoto59] H. Hasimoto. “On the Periodic Fundamental Solutions of the Stokes Equations and their Application to Viscous Flow Past a Cubic Array of Spheres” *J. Fluid. Mech.* No. 5, pp. 317-328

(1959)

- [Hatch83] Hatch E and Ballato A. "Lateral Field Excitation Of Quartz Plates". *IEEE Ultrasonics Symp. Proc.* **1** 512-5 (1983)
- [He97] Xiaoyi He, Shi Luo. "Lattice Boltzmann Model for the Incompressible Navier-Stokes Equation" *J. of Stat. Phys.* No. 88 (1997).
- [Hempel06] Hempel U, Lucklum R, Vetelino J F and Hauptmann P "Advanced application of the impedance spectrum of a lateral field excited sensor". *Proc. Eurosensors XX* **1** 350-1 (2006)
- [Hempel07-1] Hempel U, Lucklum R and Hauptmann P "Lateral Field Excited Acoustic Wave Devices: A new Approach to Bio-Interface Sensing". *Proc. European Frequency and Time Forum* 426-30 (2007)
- [Hempel07-2] Hempel U, Lucklum R and Hauptmann P "Application of a Lateral Field Excited Acoustic Wave Device as a New Sensor Principle in Bio-interface Analysis" *Proc. Eurosensors XXI & Transducers 07* 1729-32 (2007)
- [Hempel07-3] Hempel U, Lucklum R, Vetelino J F and Hauptmann P. "Advanced Application of the Impedance Spectrum of a Lateral Field Excited Sensor" *Sensors & Actuators A: Physical* in press (2007)
- [Hempel08] Ulrike Hempel, Ralf Lucklum, Peter Hauptmann, Errol P. EerNisse, Derek Puccio, R. Fernández. "Quartz crystal resonator sensors under lateral field excitation – A theoretical and experimental analysis" *Measurement Science and Technology*, vol. 19. (2008)
- [Hengerer99] A. Hengerer, J. Decaer, A. Prohaska, *Biosens. Bioelectron.*, vol 14, pp. 139-144,1999
- [Hillman01] A.R. Hillman, A. Jackson and S.J. Martin, *Anal. Chem.*, **73**, 540 (2001)
- [Hillman97] A.R. Hillman, *Solid State Ionics*, **94**, 151 (1997)

- [Hillman98] A. R. Hillman, M. J. Brown, S. J. Martin, *J. Am. Chem. Soc.*, **120**, 12968 (1998)
- [Hu03] Hu Y, French Jr L A, Radecsky K, DaCunha M P, Millard P and Vetelino J F. "A Lateral Field Excited Liquid Acoustic Wave Sensor". *Proc. IEEE Ultrasonics Symposium* 46-51 (2003)
- [Hutton04] Fundamentals of Finite element Analysis. D. V. Hutton. Ed. Mcgraw-Hill (2004)
- [Ishii79] K. Ishii. "Viscous Flow Past Multiple Planar Arrays of Small Spheres" *J. Phys. Soc. Japan* No. 46, 2 (1979)
- [Jiménez03] Jiménez, Y., Sogorb, T., Arnau, A., Otero, M., Calvo, E., *Proceedings of the Fourth Acoustic Wave Sensor Workshop AWSW-4, Salbris, France* (2003)
- [Jiménez04-1] Y. Jiménez, Ph.D dissertation, Polytechnic University of Valencia, Valencia, Spain, (2004)
- [Jiménez04-2] Y. Jiménez, M. Otero and A. Arnau, in *Piezoelectric Transducers and Applications* 1<sup>st</sup> ed., A Arnau ed., Ed. Springer Verlag Berlin Heidelberg, p. 255 (2004)
- [Jiménez06-1] Y. Jiménez, R. Fernández, R. Torres and A. Arnau, "A contribution to Solve the Problem of Coating Properties Extraction in Quartz Crystal Microbalance Applications" *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect. Freq. Contr.* Vol. 53 (2006)
- [Jiménez06-2] Y. Jiménez, R. Fernández, R. Torres, A. Arnau, "Characterization of Electrochemically Prepared Conducting Polymer Films by Impedance Analysis at Quartz Crystal. Study of the Surface Roughness Effect on the Effective Values of the Viscoelastic Properties of the Coating" *Journal of the Electrochemical Society* vol. 153 (2006)
- [Johnson87] Johnson, D.L., Koplik, J., Dashen, R.: *Journal of Fluids Mechanical*, vol. 176, pp. 379, 1987.
- [Kanazawa85-1] Kanazawa, K.K., Gordon II, J.G.: "Frequency of a Quartz Crystal Microbalance in Contact with a Liquid", *Analytical Chemistry*, vol. 57, pp. 1770-1771, 1985.

- [Kanazawa85-2] Kanazawa, K.K., Gordon II, J.G.: "The Oscillation Frequency of a Quartz Resonator in Contact with a Liquid", *Analytica Chimica Acta*, vol. 175, pp. 99-105, 1985.
- [Kanazawa93] Kanazawa, K.K., Melroy, O.R.: "The Quartz Resonator: Electrochemical applications", *IBM J. Res. Dev.*, vol. 37, nº 2, pp. 157-171, 1993.
- [King64] King, W.H.: *Analytical Chemistry*, vol. 36, pp.1735, 1964
- [Knackstedt93] Knackstedt, M.A., Sahimi, M., Chan, D.Y.C.: *Physical Review E*, vol. 47, nº 4, pp. 2593, 1993.
- [Konash80] Konash, P.L., Bastiaans, G.J.: "Piezoelectric Crystals as Detectors for Liquid Chromatography", *Analytical Chemistry*, vol. 52, pp. 1929-1931, 1980.
- [Kuroiwa02] M. Kuroiwa, M. Nakazawa. An Analysis of Plate Surface Roughness Effect for AT-Cut Resonators. IEEE Int. Freq. Con. Symp. 2002
- [Kvarnström99] C. Kvarnström, H. Neugebauer, S. Blomquist, H.J. Ahonen, J. Kankare, A. Ivaska, *Eletrochim. Acta*, **44**, 2739 (1999)
- [Ladd01] A. Ladd, R. Verberg. "Lattice Boltzmann Simulations of Particle-Fluid Suspensions" *J. of Stat. Phys.* No. 104 (2001).
- [Lamb32] P. H. Lamb "Hydrodynamics". Cambridge U. (1932)
- [Landau91] L. D. Landau, E. M. Lifshitz. "Mecánica de Fluidos", Vol. 6 del Curso de Física Teórica. Editorial Reverté. (1991)
- [Lide03] CRC Handbook of Chemistry and Physics, Lide D (CRC Press) 2003-2004 )
- [Liess97] H. Liess et al. Acoustic waves at the SolidLiquid Interface. *Faraday Discuss.*,107,39-52. 1997
- [Lu05] F. Lu et al. "Finite Element Analysis of Interference for the Laterally Coupled Quartz Crystal Microbalance" *Sensors and Actuators A*, vol. 119, pp. 90-99 (2005)
- [Lu72] Lu, C., Lewis, O.: *Appl. Phys.*, vol. 43, pp. 4385, 1972.
- [Lucklum04] R. Lucklum, D. Soares, K. Kanazawa, in *Piezoelectric Transducers and Applications* 1<sup>st</sup> ed., A Arnau ed., Ed. Springer Verlag Berlin Heidelberg, p.69 (2004)

- [Lucklum97-1] Lucklum, R., Hauptmann, P.: "Determination of Polymer Shear Modulus with Quartz Crystal Resonators", *Faraday Discuss.*, vol. 107, pp. 123-140, 1997.
- [Lucklum98] Lucklum, R., Behling, C., Hauptmann, P., Cernosek, R.W., Martin, S.J.: "Error Analysis of Material Parameter Determination with Quartz-Crystal Resonators", *Sensors and Actuators A*, vol. 66, pp. 184-192, 1998.
- [Martin91] S.J. Martin, V.E. Granstaff, G. C. Frye, *Anal. Chem.* **63**, 2272 (1991)
- [Martin93-1] S. J. Martin, G. C. Frye, A. J. Ricco and S. D. Senturia, *Anal. Chem.*, **65**, 2910 (1993)
- [Martynov01] S. I. Martynov. "Hydrodynamic Interaction and Deformation of Drops" *J. Of Eng. Phys. Thermophys.* No. 74 (2001)
- [Martynov02] S. I. Martynov. "Viscous Flow Past a Periodic Array of Spheres" *Fluid Dynamics* No. 37, pp. 889-895 (2002).
- [Martynov05] S. I. Martynov, A. Syromyasov. "Viscosity of a Suspension with a Cubic array of Spheres in a Shear Flow". *Fluid Dynamics* No. 40, pp. 503-513 (2005).
- [Martynov07] S. I. Martynov, A. Syromyasov "Symmetry of a Periodic Array of Particles and a Viscous Fluid Flow in the Stokes Approximation". *Fluid Dynamics* No. 42, pp. 340-353 (2007).
- [Martynov98] S. I. Martynov. "Hydrodynamic Interaction of Particles". *Fluid Dynamics* No. 33 (1998).
- [Mchale04] G. Mchale, M. Newton, Surface Roughness and Interfacial Slip Boundary Condition for Quartz Crystal Microbalances. *J. App. Phys.* Vol. 95, No. 1, 2004
- [Mecea89] Mecea, V.M.: "A New Method of Measuring the Mass Sensitive Area of Quartz Crystal Resonators", *Journal Of Physics. E*, vol. 22, pp. 59-61, 1989.
- [Mecea96] Mecea, V.M., Carlsson, J.O.: "Extensions of The Quartz-Crystal-Microbalance Technique", *Sensors And Actuators A-Physical*, vol. 53, pp. 371-378, 1996.
- [Miller68] Miller, J.G., Bolef, D.I.: *Appl. Phys.*, vol. 39, pp. 4589, 1968.

- [Mindlin51] R. D. Mindlin. "Thickness-Shear and Flexural Vibrations of Crystal Plates" *J. Of App. Physics*, vol. 22, n. 3 (1951)
- [Mindlin54] R. D. Mindlin, H. Deresiewicz. „Thickness-Shear and Flexural Vibrations of Circular Plates”. *J. of App. Physics*, vol. 25, n. 10 (1954)
- [Mindlin66] R. D. Mindlin, P. C. Lee. "Thickness-Shear and Flexural Vibrations of Partially Plated Crystal Plates" *Int. J. Solids Structures*, Vol. 2, pp. 125-139. (1966)
- [Mindlin67] R. Mindlin, W. J. Spencer. "Anharmonic, Thickness-Twist Overtones of Thickness-Shear and Flexural Vibrations of Rectangular, AT-Cut Quartz Plates" *J. Acous. Soc. Of America*, vol. 42, n. 6 (1967)
- [Navidi06] Estadística para ingenieros y científicos. William Navidi. Ed. McGraw Hill (2006).
- [Nitsche89] L. C. Nitsche, H. Brenner "Eulerian Kinematics of Flow through Spatially Periodic Models of Porous Media.". *Arch. Rational Mechanics Anal.* Vol. 107, No. 3, pp. 225-292 (1989)
- [Ochoa04] L. Ochoa, Y. Jiménez, A. Arnau, *XXVI Congreso Internacional de Ingeniería Eléctrica* (Electro 2004), Chihuahua, México, October 27-29,139 (2004)
- [Oden91] Finite Elements: An Introduction. J. T. Oden. *Handbook of Numerical Analysis Vol. II.* Ed. P. Ciarlet, J. Lions. Elsevier Science. (1991)
- [Ogata03] H. Ogata, K. Amano, M. Sugihara, D. Okano. "A Fundamental Solution Method for Viscous Flow Problems with Obstacles in a Periodic Array" *J. Comp. App. Math.* Vol. 152, pp 411-425 (2003)
- [Ogata06-1] H. Ogata. *J. Comp* "A Fundamental Solution Method for Three-Dimensional Stokes Flow Problems with Obstacles in a Planar Periodic Array". *App. Math.* Vol. 189, pp 622-634 (2006)
- [Ogata06-2] H. Ogata, K. Amano. *J. Comp.* "A Fundamental Solution Method for Three-Dimensional Viscous Flow Problems with Obstacles in a Periodic Array" *App. Math.* Vol. 193, pp 302-318 (2006)

- [Oyama95] Oyama, N., Ohsaka, T.: *Prog. Polym. Sci.*, vol. 20, pp. 761-818, 1995.
- [Pao04] S. Y. Pao, M. K. Chao et al. "An Efficient Numerical Method in Calculating the Electrical Impedance Different Modes of AT-Quartz Crystal Resonator" IEEE International Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control Joint 50<sup>th</sup> Anniversary Conference (2004)
- [Piro01] B. Piro, L. A. Dang, M. C. Pham, S. Fabiano, C. Tran-Minh, *J. Electroanal. Chem.*, **512**, 101 (2001)
- [Pozrikidis96] C. Pozrikidis. "Computation of Periodic Green's Functions of Stokes Flow" *J. Eng. Math.* Vol. 30, pp. 79-96 (1996)
- [Rammelt01] U. Rammelt, P. T. Nguyen and W. Plieth, *Electrochim. Acta*, **46**, 4251 (2001)
- [Rayleigh45] Rayleigh, J.W.S.: "The Theory of Sound", *Dover Publications New York*, 1945.
- [Rechendorff07] K. Rechendorff, M. Hovgaard, M. Foss, F. Besenbacher. "Influence of Surface Roughness on Quartz Crystal Microbalance Measurements in Liquids" *Journal of Applied Physics*, vol. 101(2007)
- [Sahimi93] Sahimi, M: *M.Rev.Modern Phys.*, vol. 65, pp. 1393, 1993.
- [Sakti00] S. P. Sakti, P. Hauptmann, P. Zimmermann, *Eurosensors XIV*, Copenhagen, pp. 475-476, 2000
- [Sangani83] A. Sangani, A. Acrivos. "The Effective Conductivity of a Periodic Array of Spheres" *Proc. R. Soc. Lond. A* Vol. 386, pp. 263-275 (1983)
- [Sangani88] A. S. Sangani, S. Behl. "The Planar Singular Solutions of Stokes and Laplace Equations and Their Application to Transport Processes Near Porous Surfaces". *Phys. Fluids A* Vol. 1, pp. 21-37 (1988)
- [Sauerbrey59] G. Sauerbrey, *Z. Phys.*, **155**, 206 (1959)
- [Schram06] P. P. J. M. Schram, A. S. Usenko, I. P. Yaki-menko "Retarded Many-Sphere Hydrodynamic Interactions in a Viscous Fluid" *J. Phys. A: Math. Gen.* Vol. 39, pp. 3147-3194 (2006)

- [Schumacher85] R. Schumacher, G. Borges, and K.K. Kanazawa, *Surf. Sci.*, **163**, L621 (1985)
- [Shen03] Frequency Interference Between Two Mesa-Shaped Quartz Crystal Microbalances. IEEE International Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control, vol. 50, n. 6 (2003)
- [Shen04-1] F. Shen, P. Lu et al. "Frequency Coupling and Energy Trapping in Mesa-Shaped Multichannel Quartz Crystal Microbalances" *Sensors and Actuators A*, vol 111, pp. 180-187 (2004)
- [Shen04-2] F. Shen, P. Lu. "Influence of Interchannel Spacing on the Dynamical Properties of Multichannel Quartz Crystal Microbalance" IEEE International Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control, vol. 51, n. 2 (2004)
- [Shockley66] W. Shockley, D. R. Curran, J. Koneval. "Trapped-Energy Modes in Quartz Filter Crystals" *J. Acous. Soc. Of America*, vol. 41, n. 4 (1966)
- [Skompska00] Skompska, M., Jackson, A., Hillman, R., *Anal. Chem.*, **2**, 4748 (2000)
- [Stockbridge62] Stockbridge, C.D., Warner, A.W.: "A Vacuum System for Mass and Thermal Measurement with Resonating Crystalline Quartz", *Vacuum Microbalance Techniques (Plenum Press 1962)*, vol. 2, pp. 93-114, 1962.
- [Tabakova82-1] S.S. Tabakova, Z. D. Zapryanov. "On the Hydrodynamic Interaction of Two Spheres Oscillating in a Viscous Fluid. Axisymmetrical Case" *J. App. Math. Phys. (ZAMP)* Vol. 33, pp. 345-357 (1982)
- [Tabakova82-2] S.S. Tabakova, Z. D. Zapryanov "On the Hydrodynamic Interaction of Two Spheres Oscillating in a Viscous Fluid. Three Dimensional Case". *J. App. Math. Phys. (ZAMP)* Vol. 33, pp. 487-502 (1982)
- [Theisen04] L. Theisen, S. Martin, A. Hillman; A Model for the Quartz Crystal Microbalance Frequency Response to Wetting Characteristics of Corrugated Surfaces. *Anal. Chem.*, 76, 796-804. 2004



- 
- [Tomita79] Y. Tomita, G. G. Guilbault, *Analytical Chemistry*, vol 51, n° 9, pp. 1475-1478, 1979
- [Urbakh94-1] M. Urbakh, L. Daikhin. Influence of the Surface Morphology on the Quartz Crystal Microbalance Response in a Fluid. *Langmuir*, 10, pp. 2836-2841. (1994)
- [Urbakh94-2] M. Urbakh, L. Daikhin. Roughness Effect of a Quartz Crystal Resonator in Contact with a Liquid. *Phys. Rev. B* 49, No. 7. (1994)
- [Urbakh98] M. Urbakh, L. Daikhin. Surface Morphology and the Quartz Crystal Microbalance Response in Liquids. *Colloids and Surfaces A*, 134, pp. 75-84. (1998)
- [Versteeg95] H. Versteeg, W. Malalasekera. "An introduction to Computational Fluid Dynamics. The Finite Volume Method" Longman Group Ltd. (1995)
- [Vig01] Vig J and Ballato A. "Techniques for sensing the properties of fluids with a resonators assembly" *U. S. Patent 6,260,408*. (2001)
- [Vig98] Vig J "Chemical and biological sensor based on microresonators" *U. S. Patent 5,744,902*. (1998)
- [Wehner04] S. Wehner et al. Roughness-Induced Acoustic Second Harmonic Generation during Electrochemical Metal Deposition on the Quartz Crystal Microbalance. *Langmuir* 20, 2356-2360. 2004
- [Wolff00] Wolff, O., Johannsmann, D.: "Shear Moduli of Polystyrene Thin Films Determined with Quartz Crystal Resonators in the Sandwich Configuration", *J. Appl. Phys.*, vol. 87, n° 9, pp. 4182-4188, 2000.
- [Wondraczek04] K. Wondraczek, A. Bund, D. Johannsmann. Acoustic Second Harmonic Generation from Rough Surfaces under Shear Excitation in Liquids. *Langmuir* 20, pp. 10346-10350, (2004)
- [Yang93] M Yang et al. Interfacial Properties and the Response of the Thickness-Shear-Mode Acoustic Wave Sensor in Liquids. *Langmuir*, 9 802-811. 1993
- [Zhang98] C. Zhang et al. Mass Effects of Quartz Resonator Sensors with Different Surface Microstructures in Liquids. *IEEE Ult. Ferr. And Feq. Con.*, Vol. 45, No. 5 1998

- [Zick82] A.A.Zick, G.M.Homsy. "Stokes Flow through Periodic Arrays of Spheres" J. Fluid. Mech., Vol. 115, pp. 13-26 (1982)
- [Zienkiewicz67-1] "The Finite Element Method. The Basis", R. L. Taylor and O. C. Zienkiewicz. Ed. Mcgraw-Hill (1967)
- [Zienkiewicz67-2] The Finite Element Method. Solid Mechanics. O. C. Zienkiewicz, R. L. Taylor. Ed. Mcgraw-Hill (1967)

## Apéndice A. Deducción de los Modelos de Rugosidad de Daikhin y Etchenique

### A.1 Introducción

Cuando la superficie del resonador es rugosa, el movimiento del líquido generado por su oscilación se complica mucho más en comparación con el de una superficie pulida, la cual genera un flujo laminar paralelo a dicha superficie. Cuando la superficie es rugosa, se producen una variedad de mecanismos adicionales de acoplamiento entre las ondas acústicas y el movimiento del líquido, tales como la generación de flujo no laminar, conversión del movimiento paralelo a la superficie en movimiento perpendicular a la misma, atrapamiento del líquido en las cavidades y poros, etc. Se ha demostrado experimentalmente que el incremento de frecuencia producido por una superficie rugosa, incluye una contribución inercial debida al líquido rígidamente atrapado en la superficie, y una contribución no inercial debida a la disipación de energía viscosa causada por el flujo no laminar del líquido [Martin93-1]. Existe por tanto, una influencia clara de la rugosidad de la superficie vibrante sobre el comportamiento resonante del cristal de cuarzo, la cual ha sido discutida por Schumacher [Schumacher85], Martin et al. [Martin93-1], Daikhin et al. [Daikhin96, Daikhin97, Daikhin02, Urbakh94-1, Urbakh94-2, Urbakh98] y Etchenique [Etchenique00]. Trabajos posteriores, han utilizado los modelos derivados por estos autores para explicar ciertos fenómenos observados en sus experimentos [Bund02, Bund04, Rechendorff07].

Uno de los primeros modelos de rugosidad fue introducido por Schumacher en 1985 [Schumacher85], dicho modelo sólo considera un parámetro para describir las dimensiones de la superficie rugosa; y sólo es válido cuando la dimensión característica de dicha rugosidad es considerablemente más pequeña que la profundidad de penetración que tiene la onda en el medio líquido depositado sobre el sensor. Este modelo describe la superficie rugosa como un patrón regular de cavidades semiesféricas de diámetro  $\varepsilon$ . El único efecto que produce esta capa en la respuesta del resonador es un desplazamiento de frecuencia debido al líquido que queda rígidamente atrapado en dichas cavidades. Dicho desplazamiento de frecuencia es equivalente al que proporcionaría la ecuación de Sauerbrey para una capa rígida de espesor  $\varepsilon/2$ , y de la misma densidad que la del medio líquido depositado sobre el sensor.

En 1994, Urbakh y Daikhin desarrollan una teoría para estimar el efecto que tiene, sobre el desplazamiento de frecuencia, una superficie de rugosidad "suave" [Urbakh93]. Dicha estimación sólo es posible, cuando se determina la morfología de una superficie real mediante microscopía de barrido o cuando se supone una forma concreta para el perfil superficial caso ideal [Urbakh93, Daikhin96].

En 1996 Daikhin y Urbakh introducen un modelo que utiliza dos parámetros para definir las dimensiones características de la rugosidad, el cual es válido para dimensiones verticales de la rugosidad mayores que las consideradas por los modelos propuestos hasta entonces [Daikhin96, Daikhin02]. Este tipo de rugosidad se conoce como rugosidad "fuerte". En el año 2000 Etchenique amplía el modelo introducido por Daikhin y Urbakh, extendiéndolo a rugosidades aún mayores [Etchenique00]. Hasta la fecha, los modelos de rugosidad de Daikhin y Etchenique son los más completos que existen, sin embargo incluyen una serie de limitaciones que se irán indicando a lo largo de este apéndice.

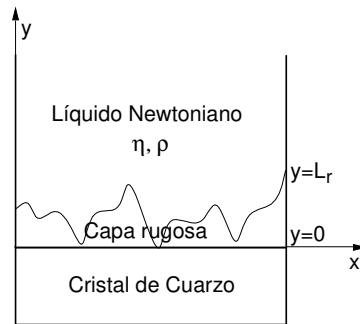
En este apéndice, se tratará de describir el desarrollo matemático que soporta los modelos de rugosidad "fuerte" y "suave".

## A.2 Descripción del modelo de rugosidad "fuerte"

Los trabajos de Daikhin et Urbakh y Etchenique para describir rugosidades "fuertes" tienen muchos puntos en común. Ambos, modelan el interfaz rugoso como un medio poroso en contacto con una fase líquida y utilizan dos parámetros para definir las dimensiones de la capa rugosa. La dimensión vertical de la rugosidad viene dada por el espesor de la capa rugosa  $L_r$ , mientras que su dimensión lateral es caracterizada mediante la dimensión característica de la porosidad, la cual se representa mediante el parámetro  $\xi$ . De acuerdo con Daikhin y Urbakh,  $\xi^2$  representa la porosidad media de la capa rugosa [Daikhin96], Etchenique afirma además que  $\xi^2$  depende de su microestructura, y por ello sólo puede ser predicha mediante teorías aproximadas [Etchenique00].

En la Fig. A.1 se ha representado el compuesto resonante que pretenden modelar, el cual está formado por el cristal de cuarzo en contacto con un medio de dos capas. Entre  $0 \leq y \leq L_r$  existe una capa porosa no uniforme formada por dos fases (sólida y líquida), y caracterizada por una porosidad  $\xi^2$ . Para  $y \geq L_r$  existe un medio newtoniano de características semi-infinitas. La capa rugosa podría corresponder tanto a la superficie del cristal, como a una superficie no uniforme de un recubrimiento depositado sobre el cristal.

Sobre los diferentes medios que forman el compuesto representado en la Fig. A.1, ambos modelos asumen las siguientes consideraciones:



**Figura A.1.** Compuesto resonante correspondiente a los modelos de Daikhin y Etchenique

1. La capa rugosa está rígidamente unida al cristal de cuarzo. De ella sólo se consideran sus propiedades geométricas, pero no sus propiedades físicas (densidad y propiedades viscoelásticas). Esta consideración introduce una serie de limitaciones cuando la capa modela la superficie de un recubrimiento, y su dimensión vertical,  $L_r$ , es comparable a la profundidad de penetración de la onda en el medio líquido, ya que en tales condiciones no puede asumirse que la capa esté rígidamente unida al cristal.
2. Todos los poros de la capa están rellenos del medio líquido; sin embargo, se asume que los fenómenos de absorción de la fase sólida son despreciables.
3. El medio líquido que hay en contacto con la capa rugosa es de características newtonianas y de espesor semi-infinito.
4. El cristal de cuarzo y la capa porosa se mueven en fase a una determinada frecuencia, provocando el movimiento del medio líquido, el cual para  $y \geq L_r$  presenta un flujo de forma laminar.
5. La permeabilidad de la capa rugosa no depende de la distancia que exista a la superficie del sensor.

Los trabajos de Daikhin y Etchenique parten del mismo planteamiento, sin embargo, mientras que Daikhin sólo obtiene el efecto que tiene la capa rugosa en el incremento de frecuencia del resonador, Etchenique proporciona la expresión de la impedancia acústica vista desde  $y=0$ . De dicha impedancia acústica puede obtenerse tanto el desplazamiento de frecuencia como el de resistencia. Posteriormente, en este mismo epígrafe,

se derivará la expresión de la impedancia acústica para el modelo de Daikhin.

Para modelar el efecto de la capa rugosa, Daikhin y Etchenique utilizan la ecuación de Brickman [Brickman47], la cual, basándose en la Ley de Darcy, describe la presión a la que se ven sometidas las partículas de un líquido que fluye a través de un medio poroso. En realidad, el medio líquido depositado sobre el sensor no fluye a través de ninguna superficie porosa, sino que las partículas del líquido se ven empujadas por una fase sólida que se mueve a una frecuencia elevada, y con una amplitud de vibración del orden de Ångstrom. La ecuación de Brickman, por tanto, no describe realmente los fenómenos que están sucediendo sobre la superficie del cristal, lo cual constituye una de las limitaciones más importantes de los modelos introducidos por Daikhin y Etchenique. No obstante, hasta la fecha los modelos introducidos por estos autores, para los casos de rugosidad “fuerte”, es el más elaborado y riguroso, por ello se utilizan en este trabajo y se incluyen en este apéndice su desarrollo.

La Ley de Darcy [Sahimi93], cuantifica la velocidad media de las partículas de un fluido viscoso e incompresible que atraviesa un medio poroso. La expresión de dicha velocidad es la siguiente:

$$v = -\frac{\xi^2}{\eta} \nabla P \quad (\text{A.1})$$

donde  $v$  es la velocidad media de las partículas del líquido,  $\xi^2$  representa la porosidad de la del medio poroso,  $\eta$  es la viscosidad del líquido que fluye a través de dicho medio, y  $P$  es la presión a la que se ven sometidas las partículas del líquido.

La Ec.(A.1) sólo se cumple bajo las siguientes condiciones:

1. No existe deslizamiento en las interfases sólido-líquido.
2. No existen flujos turbulentos, para ello debe cumplirse que el número de Reynolds sea menor que la unidad.
3. La dimensión lateral de la rugosidad,  $\zeta$ , debe ser mucho menor que la dimensión vertical,  $L_r$ .

Las partículas del líquido contenido en los poros de un material rugoso oscilante, se ven sometidas a dos tipos de presiones. La primera, es una presión de cizalla debida al movimiento del líquido que provoca la oscilación del cuarzo. La segunda está asociada a la presión que la superficie rugosa aplica sobre las partículas del líquido al chocar con ella.

El primer tipo de presión, se modela haciendo uso de la ecuación de Newton para la viscosidad compleja, bajo condiciones de flujo estacionario no turbulento. En tales condiciones, las fuerzas viscosas son

proporcionales al gradiente de velocidades en la dirección perpendicular al movimiento, y a la superficie sobre la que actúan. Así:

$$P_\eta = \eta \frac{\partial v}{\partial y} \quad (\text{A.2})$$

Para modelar el segundo tipo de presión, los trabajos de Daikhin y Etchenique utilizan la ecuación de Brickman [Brickman47], la cual, basándose en la Ley de Darcy, describe la presión a la que se ven sometidas las partículas de un líquido que fluye a través de un medio poroso. En la ecuación de Brickman, el efecto que tiene la fase sólida sobre las partículas del medio líquido, viene dado por una fuerza de tipo resistiva de la forma:

$$P_r = \eta \zeta^{-2} (v_0 - v) \quad (\text{A.3})$$

donde  $v_0$  es la amplitud de la velocidad de las partículas en una zona alejada de la fase sólida.

Incluyendo la ecuación de Brickman en su modelo, consideran otros canales de disipación de energía generados por el flujo no laminar que aparece en la región rugosa. Dichos canales de disipación se incluyen en el modelo final a través de la fuerza resistiva que cuantifica la Ec.(A.3).

Los modelos de Daikhin y Etchenique utilizan esta ecuación para cuantificar la presión a la que se ven sometidas las partículas del medio líquido contenido en los poros del material rugoso oscilante. De modo que, en ese caso, la velocidad  $v_0$  que aparece en la Ec.(A.3) corresponde a la amplitud de la velocidad de oscilación de la capa porosa oscilando a una frecuencia  $\omega$ . Al utilizar la ecuación de Brickman introducen la primera limitación de su modelo, ya que el fenómeno que pretenden describir no corresponde al de un líquido fluyendo a través de un medio poroso.

En realidad, el modelo de Etchenique utiliza una extensión de la Ec.(A.3). Según Etchenique, cuando la profundidad de penetración de la onda acústica en el medio viscoso,  $\delta_v = \sqrt{2\eta/\omega\rho}$ , es mucho mayor que la dimensión lateral de la rugosidad,  $\zeta$ , el líquido se mueve en fase con la fuerza que está aplicándole la capa rugosa. En la ecuación de Brickman, las magnitudes de la fuerza y la velocidad están en fase, por tanto, esta ecuación es adecuada para describir los fenómenos que se producen para rugosidades en las que la dimensión lateral del poro es pequeña ( $\delta_v > \zeta$ )<sup>1</sup>.

<sup>1</sup> En realidad, la ecuación de Brickman da la fuerza de arrastre como fuerza viscosa, partiendo de una modificación de la ecuación de Darcy, donde se considera flujo estacionario a través de un medio poroso. Por esa razón están en fase la fuerza y la velocidad, y no aparece término inercial ya que no existe

Cuando la frecuencia del movimiento aumenta, la viscosidad de la fase líquida disminuye o la permeabilidad de la capa rugosa aumenta, la profundidad de penetración de la onda puede ser comparable a  $\xi$ . En estas condiciones, el movimiento del líquido deja de estar en fase con el movimiento de la capa rugosa, siendo necesario el uso de valores complejos para modelar la porosidad de dicha capa. En el límite, cuando  $\xi \gg \delta_v$ , la velocidad de la onda inducida por el movimiento del sólido poroso en cualquier punto del líquido, se desvanece completamente antes de alcanzar otra parte sólida. Así, en cualquier región, el líquido que está en contacto con la estructura porosa, puede ser considerado como semi-infinito. De este modo, el sistema se comporta como un resonador pulido cuya área de contacto se ve incrementada por la porosidad del sólido.

Basándose en los estudios publicados en las referencias [Charlaix88, Johnson87, Knackstedt93], Etchenique sustituye el parámetro de porosidad que aparece en la ecuación de Brickman (Ec.(A.3)) por un parámetro de porosidad de tipo complejo que viene dado por la siguiente expresión:

$$\bar{\xi}^2 = \frac{\xi^2}{\left(1 + \frac{j\omega\rho}{\eta} \xi^2\right)^{1/2}} \quad (\text{A.4})$$

Sustituyendo en la ecuación de Brickman la porosidad real por la porosidad compleja definida en la Ec.(A.4), se obtiene lo siguiente:

$$P_r = v_0 \frac{\eta}{\bar{\xi}^2} \left(1 + \frac{j\omega\rho}{\eta} \bar{\xi}^2\right)^{1/2} - v \frac{\eta}{\xi^2} \left(1 + \frac{j\omega\rho}{\eta} \xi^2\right)^{1/2} \quad (\text{A.5})$$

Cuando  $\xi \ll \delta_v$ , la porosidad compleja tiende a la real ( $\bar{\xi} \rightarrow \xi$ ), y por tanto, la ecuación anterior se reduce a la de Brickman.

El modelo propuesto por Daikhin utiliza la ecuación de Brickman (Ec.A.3) para cuantificar la presión que capa rugosa sobre el medio líquido. En cambio, el modelo propuesto por Etchenique utiliza la Ec.(A.5), la cual añade a la fuerza resistiva descrita en la Ec.(A.3) una

---

derivada de la velocidad en el tiempo. De esta manera, incluso en aquellos casos en los que la rugosidad fuera pequeña en comparación con la profundidad de penetración, la consideración de flujo no estacionario proporcionaría un término inercial adicional al término viscoso, que produciría desfase entre la fuerza de arrastre y la velocidad. Por tanto, incluso para rugosidades pequeñas, la ecuación de Brickman no modela bien los fenómenos en un cuarzo rugoso, ya que el régimen es no estacionario. Esta es la principal limitación de los modelos de rugosidad que se basan en la ecuación de Darcy o en la de Brickman.



fuerza de tipo reactiva. Para no complicar en exceso el modelo, Etchenique utiliza la porosidad real en el segundo término de la Ec.(A.5). Así, la ecuación que finalmente utilizan para cuantificar la presión es la siguiente:

$$P_r = v_0 \frac{\eta}{\xi^2} \left( 1 + \frac{j\omega\rho}{\eta} \xi^2 \right)^{1/2} - v \frac{\eta}{\xi^2} \quad (\text{A.6})$$

El error cometido por esta simplificación no es significativo, y por el contrario permite una interpretación mucho más sencilla de los resultados obtenidos.

La impedancia acústica vista desde  $y=0$  en el compuesto de la Fig. A.1, viene dada por (Ec.(A.7))<sup>2</sup>:

$$Z_L|_{y=0} = \frac{P|_{y=0}}{v|_{y=0}} \quad (\text{A.7})$$

Para obtener su expresión es necesario conocer el valor de la presión y de la velocidad en  $y=0$ . La expresión de estas dos magnitudes se obtiene analizando las fuerzas a las que se ven sometidas las partículas del medio líquido depositado sobre el sensor.

El planteamiento del equilibrio de fuerzas en una rebanada de los materiales depositados sobre el sensor, de espesor  $dy$  (Ver Fig. A.2), da lugar a la siguiente ecuación:

$$\frac{\partial P}{\partial y} = j\omega\rho v \quad (\text{A.8})$$

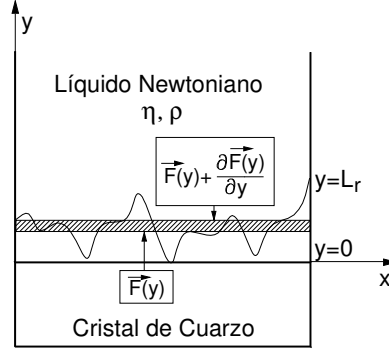
En la ecuación anterior se ha utilizado la siguiente relación existente entre la velocidad y la aceleración de un movimiento armónico con el tiempo de velocidad  $v(y,t) = v(y)e^{j\omega t}$ :

$$a(y,t) = j\omega v(y)e^{j\omega t} = j\omega v(y,t) \quad (\text{A.9})$$

Según las consideraciones establecidas sobre el compuesto resonante, la única presión a la que se ven sometidas las partículas situadas en el medio newtoniano es la de tipo viscoso dada por la Ec.(A.2). Por tanto, el planteamiento de fuerzas en la región del medio newtoniano semi-infinito ( $y \geq L_r$ ) es la siguiente:

$$j\omega\rho v = \eta \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \quad (\text{A.10})$$

<sup>2</sup> Cuando se trabaja con presiones el signo menos que aparece en la Ec.(A.7) no debe ser considerado.



**Figura. A.2.** Fuerzas a las que se ven sometidas las partículas de una rebanada de espesor diferencial, tomada en los materiales depositados sobre el cristal de cuarzo.

Por otro lado, a la fuerza de tipo viscoso a la que se ven sometidas las partículas del líquido situadas en los poros de la capa rugosa, debe añadirse la fuerza que ejerce dicha capa sobre la fase líquida. De este modo, el planteamiento de fuerzas en la región rugosa ( $0 \leq y \leq L_r$ ) es la siguiente:

$$j\omega\rho v = \eta \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} + P_r \quad (\text{A.11})$$

Sustituyendo en la ecuación anterior la expresión de  $P_r$  que proporciona la ecuación de Brickman (Ec.(A.3)), se obtiene el planteamiento de fuerzas utilizado por Daikhin en el desarrollo de su modelo [Daikhin96]:

$$j\omega\rho v = \eta \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} + \frac{\eta}{\xi^2} v_0 - \frac{\eta}{\xi^2} v \quad (\text{A.12})$$

El planteamiento de fuerzas utilizado por Etchenique, se obtiene sustituyendo la expresión de  $P_r$  que proporciona la Ec.(A.6) en la Ec.(A.11) [Etchenique00]. Así:

$$j\omega\rho v = \eta \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} + \frac{\eta}{\xi^2} \left( 1 + \frac{j\omega\rho}{\eta} \xi^2 \right)^{1/2} v_0 - \frac{\eta}{\xi^2} v \quad (\text{A.13})$$

Utilizando la relación dada por la Ec.(A.9) en las dos ecuaciones anteriores (Ec.(A.12) y Ec.(A.13)), se obtienen dos ecuaciones diferenciales cuya resolución proporciona la expresión de la velocidad de las partículas del medio líquido en las dos regiones del compuesto.

En la región  $0 \leq y \leq L_r$ , la ecuación diferencial que proporciona el planteamiento de fuerzas de Etchenique es la siguiente:

$$\left( \frac{\rho}{j\omega} - \frac{\eta}{\omega^2 \xi^2} \right) \frac{\partial^2 v}{\partial t} - \eta \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} = v_0 \frac{\eta}{\xi^2} \quad (\text{A.14})$$

Mientras que el planteamiento de fuerzas de Daikhin proporciona esta otra:

$$\left( \frac{\rho}{j\omega} - \frac{\eta}{\omega^2 \xi^2} \right) \frac{\partial^2 v}{\partial t} - \eta \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} = v_0 \frac{\eta}{\xi^2} \quad (\text{A.15})$$

La ecuación homogénea de las dos ecuaciones diferenciales anteriores es la misma:

$$\left( \frac{\rho}{j\omega} - \frac{\eta}{\omega^2 \xi^2} \right) \frac{\partial^2 v}{\partial t} = \eta \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \quad (\text{A.16})$$

siendo su solución la siguiente:

$$v_h(y) = C_1 e^{jK_L y} + C_2 e^{-jK_L y} \quad (\text{A.17})$$

En la ecuación anterior,  $K_L = jK_I$ , donde  $K_I^2 = K_0^2 + \xi^2$  y  $K_0 = \sqrt{j\omega\rho/\eta}$ .

Por otro lado, la solución particular de la Ec.(A.14) y de la Ec.(A.15), se obtiene sustituyendo una expresión de la forma  $v_p(y,t) = C_0 e^{j\alpha}$ . La ecuación diferencial que plantea el modelo de Etchenique (Ec.(A.14)), proporciona el siguiente resultado:

$$C_0 \Big|_{\text{Etch}} = \frac{v_0}{\xi K_I} \quad (\text{A.18})$$

Mientras que la que plantea el modelo de Daikhin (Ec.(A.15)), proporciona este otro:

$$C_0 \Big|_{\text{Daik}} = \frac{v_0}{\xi^2 K_I^2} \quad (\text{A.19})$$

Así pues, en la región  $0 \leq y \leq L_r$  la expresión de la velocidad de las partículas viene dada por la siguiente expresión:

$$v(y,t) = (C_0 + C_1 e^{-K_I y} + C_2 e^{K_I y}) e^{j\alpha} \quad (\text{A.20})$$

En la región del medio newtoniano semi-infinito ( $y \geq L_r$ ), la ecuación diferencial que se obtiene del planteamiento de fuerzas que proporciona la Ec.(A.10) es la siguiente :

$$v(y,t) = (C_3 e^{jK_L y} + C_4 e^{-jK_L y}) e^{j\omega t} \quad (\text{A.21})$$

donde  $K_L = jK_0$ . Teniendo en cuenta que cuando  $y \rightarrow \infty$  el movimiento de las partículas en el líquido se extingue debido a la amortiguación del medio, la ecuación anterior se reduce a la siguiente:

$$v(y,t) = (C_3 e^{jK_L y}) e^{j\omega t} \quad (\text{A.22})$$

Para obtener las incógnitas  $C_1$ ,  $C_2$  y  $C_3$  que aparecen en las ecuaciones anteriores, se aplican sobre ellas las siguientes condiciones de contorno:

1. Continuidad de velocidades en  $y=0$  ( $v(y=0, t) = v_0 e^{j\omega t}$ ):

$$C_0 + C_1 + C_2 = v_0 \quad (\text{A.23})$$

2. Continuidad de velocidades en  $y=L_r$  ( $v(y=L_r^-, t) = v(y=L_r^+, t)$ ):

$$C_0 + C_1 e^{-K_1 L_r} + C_2 e^{K_1 L_r} = C_3 e^{-K_0 L_r} \quad (\text{A.24})$$

3. Continuidad de presiones en  $y=L_r$  ( $P_r(y=L_r^-, t) = P_r(y=L_r^+, t)$ ):

$$-K_1 C_1 e^{-K_1 L_r} + K_1 C_2 e^{K_1 L_r} = -K_0 C_3 e^{-K_0 L_r} \quad (\text{A.25})$$

Operando en las ecuaciones anteriores se obtienen las siguientes expresiones de  $C_1$ , y  $C_2$  para el modelo de Etchenique:

$$C_1 = \frac{v_0}{2M} \left( (K_0 + K_1) e^{K_1 L_r} \left( 1 - \frac{1}{\xi K_1} \right) + \frac{K_0}{\xi K_1} \right) \quad (\text{A.26})$$

$$C_2 = \frac{v_0}{2M} \left( (K_1 - K_0) e^{-K_1 L_r} \left( 1 - \frac{1}{\xi K_1} \right) - \frac{K_0}{\xi K_1} \right) \quad (\text{A.27})$$

Y estas otras para el modelo de Daikhin:

$$C_1 = \frac{v_0}{2M} \left( (K_0 + K_1) e^{K_1 L_r} \left( 1 - \frac{1}{\xi^2 K_1^2} \right) + \frac{K_0}{\xi^2 K_1^2} \right) \quad (\text{A.28})$$

$$C_2 = \frac{v_0}{2M} \left( (K_1 - K_0) e^{-K_1 L_r} \left( 1 - \frac{1}{\xi^2 K_1^2} \right) - \frac{K_0}{\xi^2 K_1^2} \right) \quad (\text{A.29})$$

En ambos modelos la expresión de  $M$  es:

$$M = K_0 \sinh(K_1 L_r) + K_1 \cosh(K_1 L_r) \quad (\text{A.30})$$

Respecto a la expresión de  $C_3$  en ambos modelos es la siguiente:

$$C_3 = \frac{K_1 (C_0 + 2C_2 e^{K_1 L_r})}{(K_1 - K_0) e^{-K_0 L_r}} \quad (\text{A.31})$$

Una vez que se conoce la expresión de la velocidad (Ec.(A.20) y Ec.(A.22)), la presión se obtiene a partir de la relación que proporciona la Ec.(A.7):

$$P = j\omega\rho \int_0^{\infty} v(y, t) dy = j\omega\rho e^{j\omega t} \int_0^{\infty} v(y) dy \quad (\text{A.32})$$

Teniendo en cuenta que  $v(y=0)=v_0$ , la expresión de la impedancia acústica que resulta es la siguiente (Ver Ec.(A.7)):

$$Z_L|_{y=0} = \frac{j\omega\rho}{v_0} \int_0^{\infty} v(y) dy \quad (\text{A.33})$$

donde  $v(y)$  tiene la expresión de la Ec.(A.22) para  $y \geq L_r$ , y la expresión de la Ec.(A.20) para  $0 \leq y \leq L_r$ .

Operando, se obtiene la siguiente expresión de la impedancia acústica para el modelo de Etchenique [Etchenique00]:

$$Z_L = j\omega\rho \left( \frac{1}{K_0} + \frac{L_r}{\xi K_1} - \frac{1}{M\xi} \left( \frac{2K_0}{K_1^2} (\cosh(K_1 L_r) - 1) + \right) \right. \\ \left. - \frac{1}{M\xi} \left( \frac{1}{K_1} \sinh(K_1 L_r) + \frac{1}{K_0} (\cosh(K_1 L_r) - 1) \left( \frac{1}{\xi K_1} - 1 \right) \right) \right) \quad (\text{A.34})$$

Y esta otra para el modelo de Daikhin [Bund02]:

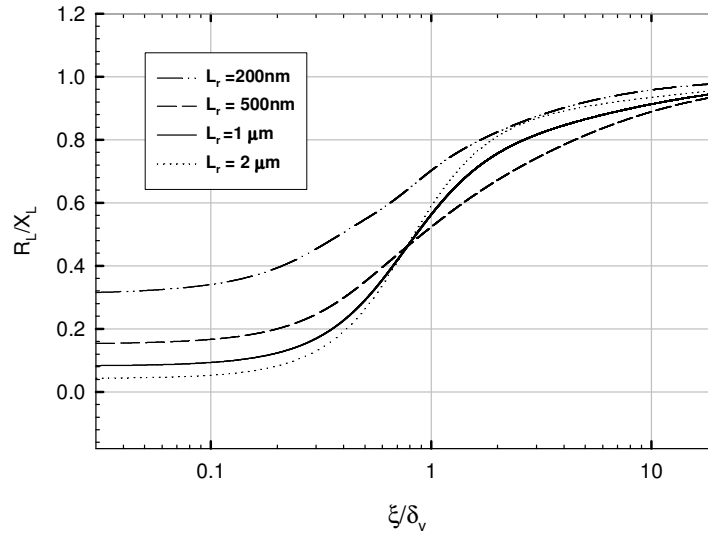
$$Z_L = j\omega\rho \left( \frac{1}{K_0} + \frac{L_r}{\xi^2 K_1^2} - \frac{1}{M\xi^2 K_1^2} \left( \frac{2K_0}{K_1^2} (\cosh(K_1 L_r) - 1) + \right) \right. \\ \left. + \sinh(K_1 L_r) \right) \quad (\text{A.35})$$

Cuando la capa es prácticamente inexistente ( $L_r \approx 0$ ), sólo queda el primer término de las ecuaciones anteriores ( $j\omega\rho/K_0$ ), el cual coincide con la impedancia acústica vista desde  $y=0$  cuando sobre la superficie del cristal perfectamente pulida se ha depositado un líquido newtoniano semi-infinito. De dicha expresión, se obtiene la ecuación de Kanazawa.

Con el fin de facilitar la comprensión de las expresiones obtenidas para la impedancia acústica  $Z_L$ , a continuación se presentan algunos resultados

gráficos que proporcionan una visión más intuitiva del efecto de la rugosidad.

En el eje de las ordenadas de las Fig. A.3 y A.4, se ha representado la relación existente entre la parte real e imaginaria de las impedancias acústicas definidas por el modelo de Etchenique y por el de Daikhin, respectivamente. En ambos modelos, se ha considerado que el medio newtoniano semi-infinito tiene propiedades similares a las del agua, de manera que la profundidad de penetración de la onda acústica en este medio es  $\delta_v \approx 178 \text{ nm}$ . En el eje de las abscisas se ha representado la relación existente entre la dimensión lateral característica de la capa rugosa  $\xi$ , y la profundidad de penetración de la onda en el medio newtoniano,  $\delta_v$ . Las curvas se han obtenido para diferentes valores de la dimensión vertical de la rugosidad  $L_r$ .

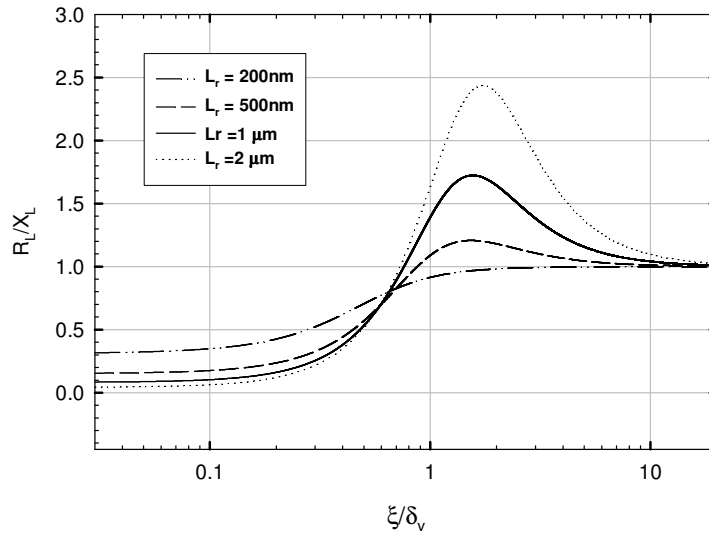


**Figura. A.3.** Relación existente entre la parte real e imaginaria de la impedancia acústica proporcionada por el modelo de Etchenique (Ec.(A.32)), para diferentes tipos de superficies rugosas

En ambas gráficas se observa que cuando  $L_r \gg \delta_v$ , y  $\xi \ll \delta_v$ , la relación  $R_L/X_L$  tiende a cero, por tanto, la impedancia acústica  $Z_L$  se asemeja a la que se tiene cuando el sensor trabaja en régimen gravimétrico ( $R_L=0$ ). Cuando la dimensión vertical de la capa rugosa es grande, en comparación con  $\delta_v$ , la onda acústica prácticamente se extingue en la capa rugosa, y no llega el medio semi-infinito. Si además, la dimensión lateral del poro es pequeña, en comparación con  $\delta_v$ , el líquido queda rígidamente atrapado en

dichos poros. En estas condiciones, el efecto que produce el medio depositado sobre el sensor, es equivalente al que produce una capa rígidamente unida a su superficie. De ahí, la gran semejanza que existe con la impedancia acústica asociada a un compuesto en el que el sensor trabaja en régimen gravimétrico.

En ambas gráficas también se observa, que cuando la dimensión lateral del poro es mucho mayor que  $\delta_v$  ( $\xi \gg \delta_v$ ), la relación  $R_L/X_L$  tiende a la unidad. De este modo, la impedancia acústica  $Z_L$  se asemeja a la que se tiene cuando sobre un cristal pulido se deposita un medio newtoniano semi-infinito ( $R_L=X_L$ ). Cuando la dimensión lateral de la capa rugosa es grande, en comparación con  $\delta_v$ , el movimiento que la superficie rugosa oscilante induce en las partículas del líquido, se desvanece completamente antes de alcanzar otra parte sólida de dicha superficie rugosa. De este modo, en cualquier región de dicha superficie, el líquido que está en contacto con ella, puede ser considerado semi-infinito. En estas condiciones, el sistema se comporta como un resonador pulido cuya área de contacto se ve incrementada por la porosidad del sólido [Etchenique00]. Por otro lado, cuanto menor es el valor de la dimensión vertical de la capa rugosa,  $L_r$ , respecto a  $\delta_v$ , el comportamiento anteriormente descrito se pone de manifiesto para valores de la relación  $\xi/\delta_v$  menores.

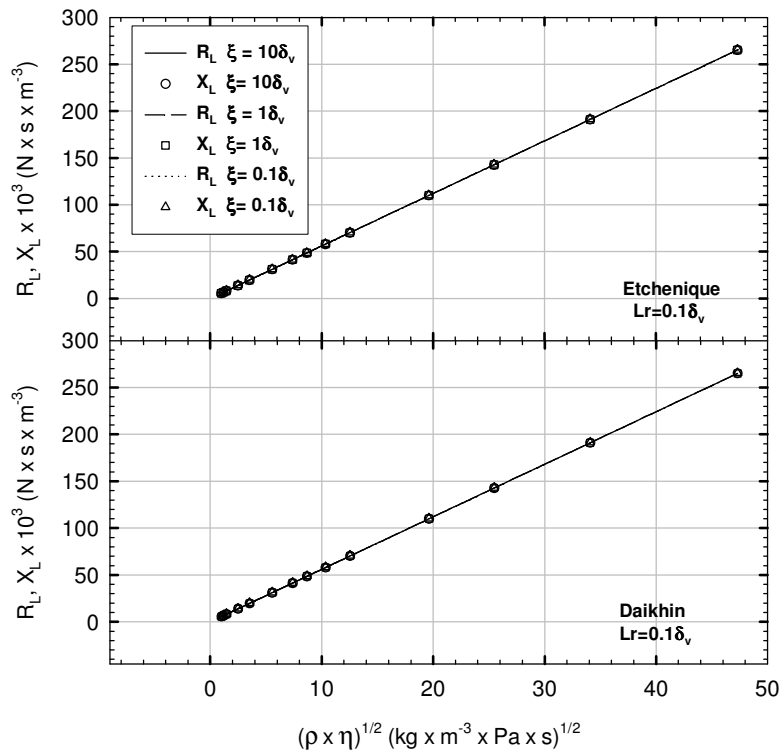


**Figura. A.4.** Relación existente entre la parte real e imaginaria de la impedancia acústica proporcionada por el modelo de Daikhin (Ec.(A.33)), para diferentes tipos de superficies rugosas.

Otro resultado que se repite en ambos modelos, es la existencia de valores de la relación  $R_L/X_L$  menores que la unidad.

Las diferencias más importantes entre ambos modelos se dan para valores de la dimensión lateral  $\xi$  comparables a los de  $\delta_v$ , ya que en realidad, el modelo de Etchenique utiliza una extensión de la ecuación de Brickman.

En las Fig. A.3 y A.4 se consideró que el medio semi-infinito tenía propiedades similares a las del agua ( $\rho\eta=1$ ). Resta, por tanto, analizar los resultados que proporcionan las ecuaciones de la impedancia acústica  $Z_L$ , cuando la viscosidad y la densidad del medio semi-infinito varían. El eje de las abscisas de los tres gráficos que se muestran a continuación (Fig. A.5, A.6 y A.7), varía desde  $(\rho\eta)^{1/2}=1$  ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{Pa}\cdot\text{s}$ )<sup>1/2</sup> (Agua), hasta  $(\rho\eta)^{1/2}=47$  ( $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{Pa}\cdot\text{s}$ )<sup>1/2</sup>.

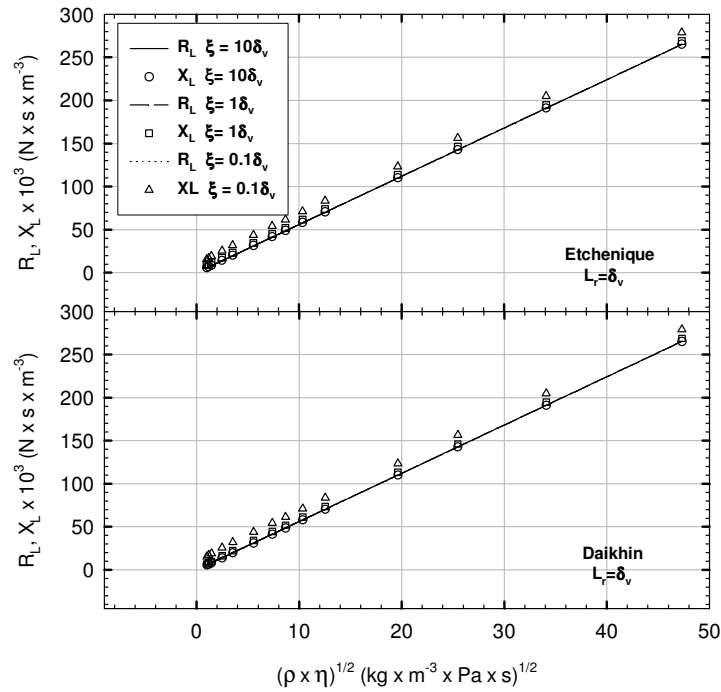


**Figura. A.5.** Valores de  $R_L$  y  $X_L$  que proporcionan el modelo de Etchenique (panel superior) y el de Daikhin (panel inferior) para medios semi-infinitos. En esta figura se considera que la dimensión vertical de la rugosidad es menor que  $\delta_v$ .



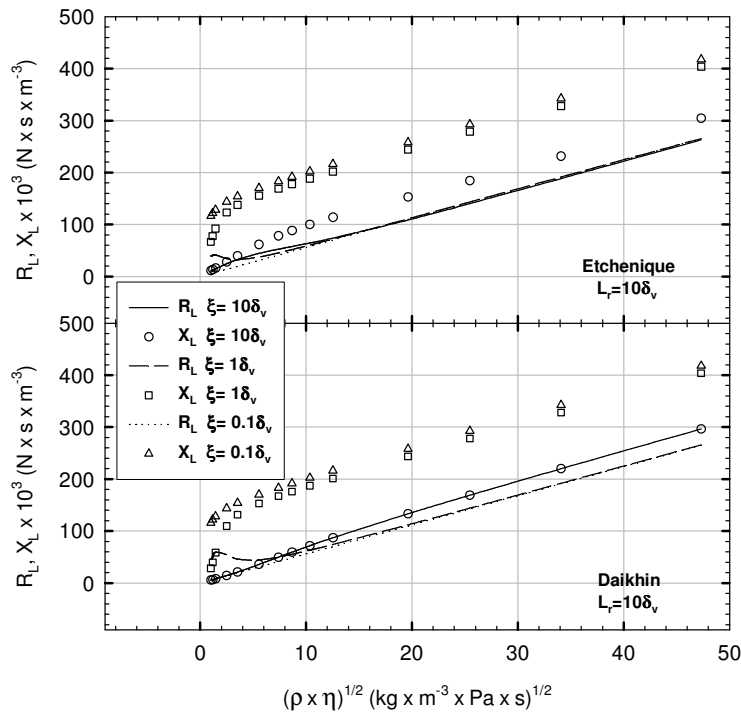
En las Fig. A.5, Fig. A.6 y Fig. A.7 se muestran los valores de  $R_L$  y  $X_L$  de los modelos de rugosidad propuestos por Etchenique y Daikhin, para diferentes valores de las propiedades del medio semi-infinito. Para analizar el efecto que tiene la dimensión lateral del poro, en cada figura se han representado diferentes curvas correspondientes a diferentes relaciones  $\xi/\delta_v$ . En cada una de las figuras representadas, se ha considerado una relación diferente entre la dimensión vertical de la rugosidad  $L_r$ , y la profundidad de penetración de la onda acústica en el medio newtoniano  $\delta_v$ .

Así, en la Fig. A.5 se ha representado el caso  $L_r=0.1\delta_v$ , en la Fig. A.6 el caso  $L_r=\delta_v$ , y finalmente, en la Fig. A.7 se ha considerado el caso  $L_r=10\delta_v$ . Cuando  $L_r$  es menor que  $\delta_v$  (Fig. A.5), independientemente de las propiedades del medio newtoniano y de la dimensión lateral del poro, la impedancia característica es muy similar a la que proporcionaría un medio newtoniano semi-infinito puesto en contacto con un cristal pulido ( $R_L=X_L$ ). En este caso, tanto el modelo de Etchenique como el de Daikhin proporcionan resultados similares.



**Figura. A.6.** Valores de  $R_L$  y  $X_L$  que proporcionan el modelo de Etchenique (panel superior) y el de Daikhin (panel inferior) para medios semi-infinitos. En esta figura se considera que la dimensión vertical de la rugosidad es igual que  $\delta_v$ .

En la Fig. A.6 se muestran los resultados obtenidos cuando la dimensión vertical de la rugosidad,  $L_r$ , es del mismo orden de magnitud que  $\delta_v$ . Al igual que en el caso anterior, independientemente de la dimensión lateral del poro  $\zeta$ , el valor de  $R_L$  apenas se modifica. Puesto que este parámetro está relacionado con la resistencia de la rama dinámica del sensor, esto indica que en este caso, al igual que en el anterior, no se producen fenómenos significativos relacionados con la disipación de energía. Sin embargo, a medida que el poro se cierra ( $\zeta \ll \delta_v$ ) se observa un incremento más pronunciado en  $X_L$ . Cuando los poros están más cerrados, el líquido queda rígidamente atrapado en ellos, este fenómeno se traduce en un aumento de la inercia del sistema, y en consecuencia también en un aumento en el incremento de frecuencia. La relación existente entre  $X_L$  y  $\Delta f_s$  explica el aumento que se tiene en  $X_L$ . En general, no se observan diferencias apreciables cuando las propiedades del medio semi-infinito varían.



**Figura. A.7.** Valores de  $R_L$  y  $X_L$  que proporcionan el modelo de Etchenique (panel superior) y el de Daikhin (panel inferior) para medios semi-infinitos. En esta figura se considera que la dimensión vertical de la rugosidad es mayor que  $\delta_v$ .

Cuando el valor de  $L_r$  es mayor que el de  $\delta_v$  (Fig. A.7), se observan diferencias apreciables en  $R_L$ , las cuales son más significativas a medida que el poro se abre. En estas condiciones ( $L_r > \delta_v$ ), prácticamente toda la onda acústica se extingue en la capa rugosa, si el poro está muy cerrado la única contribución que provoca esta capa es de tipo inercial. En cambio, a medida que el poro se abre, el líquido deja de estar rígidamente unido a él, esto hace que aparezcan fenómenos de disipación que provocan el aumento en  $R_L$ . Respecto a  $X_L$ , puesto que la dimensión vertical de la rugosidad es mayor que en el caso anterior, se observan diferencias más apreciables. Es importante destacar, que tanto en este caso como en el anterior, la capa rugosa provoca un aumento de  $X_L$  respecto de  $R_L$ .

### A.3 Descripción del modelo rugosidad "suave"

En el caso en el que la altura característica de la rugosidad es menor que la dimensión lateral de ésta, Daikhin y Urbakh denominan el fenómeno rugoso como "suave". Bajo estas condiciones, se aplica la ecuación de Navier-Stokes en el marco de la teoría de la perturbación para tratar de calcular una expresión que defina la impedancia acústica de un cristal resonador de cuarzo rugoso expuesto a un medio líquido. En este modelo, se asume que la interfase rugosa entre el cristal de cuarzo y el líquido está descrita por la ecuación (A.36).

$$z = \xi(x, y) \quad (\text{A.36})$$

El plano  $z=d$  se escoge de tal manera, que el valor medio de la función  $\xi(x,y)$  sea cero. La cara inferior del cristal, que no se encuentra en contacto con el medio líquido, se supone situada en  $z=0$ . Si suponemos oscilaciones armónicas en el tiempo como las descritas en la ecuación (A.37).

$$\vec{u}(\vec{r}, t) = \vec{u}(\vec{r}, \omega)e^{i\omega t} \quad (\text{A.37})$$

para definir los desplazamientos mecánicos en el cristal de cuarzo, la ecuación de onda en el sólido tendrá la forma:

$$-\omega^2 \vec{u}(\vec{r}, \omega) = \frac{c_{66}}{\rho_q} \nabla^2 \vec{u}(\vec{r}, \omega) \quad (\text{A.38})$$

donde  $\rho_q$  es la densidad del cuarzo,  $c_{66}$  es el modulo de cizalla del cuarzo y  $\omega$  es la pulsación. En el caso del medio líquido, las velocidades del fluido  $\vec{v}(\vec{r}, \omega)$  se pueden calcular como la solución de la ecuación de Navier-Stokes linealizada que se muestra a continuación:

$$i\omega\vec{v}(\vec{r}, \omega) = -\frac{1}{\rho_l} \nabla P(\vec{r}, \omega) + \frac{\eta}{\rho_l} \nabla^2 \vec{v}(\vec{r}, \omega) \quad (\text{A.39})$$

donde  $\rho_l$  es la densidad del medio líquido,  $\eta$  la viscosidad del medio líquido,  $P(\vec{r}, \omega)$  es la presión. Asimismo, para calcular la velocidad en el fluido los autores suponen la condición de incompresibilidad.

Para relacionar los desplazamientos en el cristal de cuarzo con las velocidades de flujo generadas en el medio fluido se supone la igualdad de velocidades en la interfaz entre el cristal y en el fluido, definida por la ecuación (A.40).

$$\vec{v}[x, y, \xi(x, y)] = i\omega\vec{u}[x, y, \xi(x, y)] \quad (\text{A.40})$$

Imponiendo la ausencia de fuerzas en la superficie del cristal en  $z=0$ , los autores llegan a las expresiones mostradas en las ecuaciones (A.41) y (A.42) para definir los desplazamientos en el cristal resonador de cuarzo.

$$u_\alpha(\vec{r}, \omega) = 2C_\alpha \cos(kz) \quad (\text{A.41})$$

$$u_z(\vec{r}, \omega) = 0 \quad (\text{A.42})$$

donde  $\alpha=x,y$ ,  $k$  es el número de onda y viene definido por la ecuación (A.43).

$$k = \omega \sqrt{\frac{\rho_q}{c_{66}}} \quad (\text{A.43})$$

Para resolver la ecuación (A.39), Daikhin y Urbakh sugieren que es conveniente usar la transformada de Fourier de las velocidades en el fluido, así como la de la presión. También proponen realizar la transformada de Fourier para las componentes tangenciales  $\vec{R} = (x, y)$  de la función que define el perfil rugoso  $z = \xi(x, y)$ , mediante la ecuación (A.44).

$$\xi(\vec{K}) = \int d\vec{R} \xi(\vec{R}) e^{-i\vec{K} \cdot \vec{R}} \quad (\text{A.44})$$

donde  $\vec{K} = (K_x, K_y)$  es el correspondiente vector de onda de la transformación de las coordenadas tangenciales. Usando la condición de incompresibilidad, la ecuación de continuidad de la mecánica de fluidos queda de la forma:

$$\nabla \cdot \vec{v}(\vec{r}, \omega) = 0 \quad (\text{A.45})$$

Resolviendo el sistema formado por las ecuaciones diferenciales (A.39) y (A.45), los autores llegan a las siguientes expresiones para la presión y la velocidad:

$$P(\vec{K}, z, \omega) = P(\vec{K})e^{-K(z-d)} \quad (\text{A.46})$$

$$v_\alpha(\vec{K}, z, \omega) = A_\alpha(\vec{K})e^{-q_k(z-d)} - \frac{1}{\rho_l \omega} K_\alpha P(\vec{K})e^{-K(z-d)} \quad (\text{A.47})$$

$$v_z(\vec{K}, z, \omega) = \frac{i}{q_k} \sum_\alpha K_\alpha A_\alpha(\vec{K})e^{-q_k(z-d)} - \frac{i}{\rho_l \omega} KP(\vec{K})e^{-K(z-d)} \quad (\text{A.48})$$

donde  $\alpha=x,y$ , y el módulo del vector de onda de las componentes tangenciales y  $q_k$  se representan cómo se muestra en las ecuaciones (A.49) y (A.50).

$$K = |\vec{K}| \quad (\text{A.49})$$

$$q_k = \sqrt{\frac{i\omega\rho_l}{c_{66}} + K^2} \quad (\text{A.50})$$

Los coeficientes  $A_\alpha(\vec{K})$  y  $P(\vec{K})$  se obtendrán a partir de la condición de contorno expresada en la ecuación (A.40). Así, a partir de las expresiones de  $\vec{u}(\vec{r}, \omega)$  y  $\vec{v}(\vec{r}, \omega)$  obtenidas en las ecuaciones (A.41), (A.42), (A.47), (A.48) y la ecuación (A.40) se obtiene una relación que debe cumplirse para cada componente cartesiana. Realizando la transformada de Fourier a cada una de estas igualdades se obtiene el sistema de ecuaciones descrito en (A.51) y (A.52).

$$\int \frac{d\vec{K}}{(2\pi)^2} \left\{ A_\alpha(\vec{K}) \left[ e^{-q_k \xi(\vec{R})} \right]_{\vec{K}-\vec{K}'} - \frac{1}{\rho_l \omega} K_\alpha P(\vec{K}) \left[ e^{-K \xi(\vec{R})} \right]_{\vec{K}-\vec{K}'} \right\} = i\omega C_\alpha \left\{ e^{ikd} \left[ e^{ik \xi(\vec{R})} \right]_{\vec{K}'} + e^{-ikd} \left[ e^{-ik \xi(\vec{R})} \right]_{\vec{K}'} \right\} \quad (\text{A.51})$$

$$\int \frac{d\vec{K}}{(2\pi)^2} \left\{ \frac{i}{q_k} \sum_\alpha K_\alpha A_\alpha(\vec{K}) \left[ e^{-q_k \xi(\vec{R})} \right]_{\vec{K}-\vec{K}'} - \frac{i}{\rho_l \omega} KP(\vec{K}) \left[ e^{-K \xi(\vec{R})} \right]_{\vec{K}-\vec{K}'} \right\} = 0 \quad (\text{A.52})$$

Se hace notar, que la ecuación (A.51) relaciona las componentes tangenciales ( $\alpha=x,y$ ), mientras que la ecuación (A.52) relaciona las componentes normales al interfaz sólido-líquido. También se hace notar,

que el subíndice  $\bar{k}$  representa el vector de onda de la transformación de Fourier realizada previamente para resolver el campo de velocidades en el fluido sin incluir la condición de contorno en el interfaz (ecuación (A.39)); mientras que el subíndice  $\bar{k}'$  es el vector de onda de la nueva transformación de Fourier realizada a cada miembro de las ecuaciones (A.51) y (A.52). Por último, se llama la atención del lector sobre los miembros de la izquierda de las ecuaciones (A.51) y (A.52), es decir, los que describen el campo de velocidades en el medio líquido, sobre los que se está realizando una transformada inversa de Fourier respecto a  $\bar{k}$ . Esta transformación inversa es imprescindible para poder igualar las velocidades en el fluido que se han obtenido en el dominio transformado, con las velocidades en el sólido que se han obtenido directamente. Los autores han escogido la notación de la ecuación (A.53) para simplificar las expresiones (A.51) y (A.52).

$$\left[ e^{-p\xi(\bar{R})} \right]_{\bar{k}'-\bar{k}} = \int d\bar{R} e^{-p\xi(\bar{R})} e^{-i(\bar{k}'-\bar{k})\cdot\bar{R}} \quad (\text{A.53})$$

El desarrollo matemático descrito nos ha llevado a un sistema de ecuaciones de una complejidad muy elevada para la resolución de las condiciones de contorno en el interfaz rugoso (ecuaciones (A.51) y (A.52)). Tratar de resolverlo directamente no es posible. A partir de este punto, los autores utilizan la llamada "teoría de la perturbación" para simplificar estas expresiones, y obtener un resultado analítico aproximado.

La idea que subyace a la "teoría de perturbaciones" es la de resolver un sistema complejo en el que se involucra un parámetro muy pequeño ("perturbación") por medio de otro más simple muy cercano a él [Bender78]. El procedimiento usual define esta "perturbación" como una serie de potencias o un polinomio de Taylor. En el modelo de Daikhin y Urbakh para rugosidades "suaves" los parámetros perturbativos se definen en las ecuaciones (A.54) y (A.55)

$$\nabla \xi(\bar{R}) \ll 1 \quad (\text{A.54})$$

$$\frac{h}{\delta} \ll 1 \quad (\text{A.55})$$

Así, los autores suponen en la ecuación (A.54) que el gradiente del perfil rugoso es muy pequeño y que por lo tanto las variaciones de la superficie son suaves. En la ecuación (A.55), los autores indican que  $h$ , que representa el valor cuadrático medio de la altura rugosa es mucho menor que la profundidad de penetración de la onda en el medio líquido.

En el marco de la "teoría de la perturbación", Daikhin y Urbakh simplifican la expresión descrita en la ecuación (A.53) transformándola en una serie de Taylor. El resultado esta definido en la ecuación (A.56).

$$\left[ e^{-q_k \xi(\vec{K})} \right]_{\vec{K}-\vec{K}'} = \delta(\vec{K}' - \vec{K}) - q_k \xi(\vec{K}' - \vec{K}) + \frac{1}{2} q_k^2 \int \frac{d\vec{K}''}{(2\pi)^2} \xi(\vec{K}' - \vec{K} - \vec{K}'') \xi(\vec{K}'') \quad (\text{A.56})$$

Esta aproximación se sustituye en el sistema de ecuaciones constituido por (A.51) y (A.52). Posteriormente, se sustituyen los coeficientes  $A_\alpha(\vec{K})$  y  $P(\vec{K})$  por una serie de potencias del parámetro perturbativo  $h$ . Finalmente, se agrupan los términos en potencias de  $h$  y se aplica el teorema fundamental de la "teoría de la perturbación". Según este teorema, cada una de las agrupaciones de términos que multiplican a una potencia de la serie perturbativa será igual a cero si el sumatorio de todos los términos de la serie también es igual a cero [Bender78]. Así, se dispone de tantas ecuaciones alternativas como grados se hayan tomado en la serie perturbativa. Estas ecuaciones se resolverán iterativamente comenzando por el grado cero. Daikhin y Urbakh obtienen en sus cálculos las siguientes expresiones para los términos de orden cero de la expansión en función de  $h$  de los coeficientes  $A_\alpha(\vec{K})$  y  $P(\vec{K})$ .

$$A_\alpha^{(0)}(0) = 2iC_\alpha \omega \cos(kd) \quad (\text{A.57})$$

$$A_\alpha^{(0)}(\vec{K}) = 0 \quad (\text{A.58})$$

$$P^{(0)}(\vec{K}) = 0 \quad (\text{A.59})$$

Para los términos de orden uno obtienen las expresiones (A.60) y (A.61)

$$A_\alpha^{(1)}(\vec{K}) = 2i\omega q_0 \cos(kd) \xi(\vec{K}) \times \left[ C_\alpha + \frac{K_\alpha}{K(q_k - K)} \sum_\beta K_\beta C_\beta \right] \quad (\text{A.60})$$

$$P^{(1)}(\vec{K}) = \frac{\rho_l \omega}{q_k} \frac{1}{K} \sum_\beta K_\beta A_\beta^{(1)}(\vec{K}) \quad (\text{A.61})$$

Finalmente, los términos de orden dos quedan reflejados en la ecuación (A.62).

$$A_\alpha^{(2)}(0) = -i\omega \cos(kd) \left\{ \int \frac{d\vec{K}''}{(2\pi)^2} \left| \xi(\vec{K}'') \right|^2 \times \left[ q_0 C_\alpha (q_0 - 2q_k) - 2 \frac{K_\alpha}{K} \sum_\beta K_\beta C_\beta \right] \right\} \quad (\text{A.62})$$

Según Daikhin y Urbakh es suficiente con llegar al orden dos en la aproximación de los coeficientes  $A_\alpha(\vec{K})$  y  $P(\vec{K})$  para obtener una buena solución. Una vez calculados dichos coeficientes a través de las condiciones de contorno especificadas en las ecuaciones (A.51) y (A.52) los autores tratan de obtener las variaciones en la frecuencia de resonancia y en el factor de pérdidas debidas al efecto rugoso. Para ello, plantean el balance de energías que se muestra en la ecuación (A.63).

$$\frac{d}{dt} \left( E_{kin}^{(q)} + U^{(q)} + E_{kin}^{(l)} \right) = Q^{(l)} \quad (\text{A.63})$$

Así proponen que la variación en el tiempo de la energía cinética en el medio líquido y de la energía cinética y potencial del cristal es solamente debida a las pérdidas producidas en el medio líquido. Las expresiones de la energía cinética y la energía potencial en el cuarzo, y de la energía cinética y las pérdidas en el medio líquido se calculan a través de las velocidades y los desplazamientos obtenidos mediante la "teoría de la perturbación" y se detallan en las ecuaciones (A.64), (A.65), (A.66) y (A.67) respectivamente.

$$E_{kin}^{(s)} = \frac{\rho_q}{2} \int d\vec{R} \int_0^{[d+\xi(\vec{R})]} dz \sum_i \left[ \frac{\partial \tilde{u}_i}{\partial t} \right]^2 \quad (\text{A.64})$$

$$U^{(q)} = \frac{c_{66}}{4} \int d\vec{R} \int_0^{[d+\xi(\vec{R})]} dz \sum_{i,j} \left[ \frac{\partial \tilde{u}_i}{\partial r_j} + \frac{\partial \tilde{u}_j}{\partial r_i} \right]^2 \quad (\text{A.65})$$

$$E_{kin}^{(l)} = \frac{\rho_l}{2} \int d\vec{R} \int_{[d+\xi(\vec{R})]}^{\infty} dz \sum_i [\tilde{v}_i]^2 \quad (\text{A.66})$$

$$Q^{(l)} = -\frac{\eta}{2} \int d\vec{R} \int_{[d+\xi(\vec{R})]}^{\infty} dz \sum_{i,j} \left[ \frac{\partial \tilde{v}_i}{\partial r_j} + \frac{\partial \tilde{v}_j}{\partial r_i} \right]^2 \quad (\text{A.67})$$

donde  $\tilde{u}_i = \text{Re} \left[ \tilde{u}(\vec{R}, z, \omega) e^{i\omega t} \right]$  y  $\tilde{v}_i = \text{Re} \left[ \tilde{v}(\vec{R}, z, \omega) e^{i\omega t} \right]$ .

Desarrollando la ecuación de balance de energías y despreciando los factores  $k\xi(\vec{K})$  con respecto a los factores  $q_0\xi(\vec{K})$  debido a la desigualdad  $k/q_0 \ll 1$ , Daikhin y Urbakh llegan a la siguiente expresión



de la que es posible extraer la frecuencia de resonancia y el factor de pérdidas.

$$tg(kd) + \frac{\rho_l}{\rho_q} \frac{k}{q_0} = -\frac{\rho_l}{S\rho_q} k \int \frac{d\vec{K}}{(2\pi)^2} |\xi(\vec{K})|^2 [q_k - q_0 + K \cos^2 \phi] \quad (\text{A.68})$$

En la ecuación (A.68),  $S$  representa la superficie del cristal,  $\phi$  es el ángulo entre la dirección de las oscilaciones de cizalla y el vector de onda bidimensional  $\vec{K}$ . Además,  $|\xi(\vec{K})|^2$  viene definida por la ecuación (A.69)

$$|\xi(\vec{K})|^2 = Sh^2 g(\vec{K}) \quad (\text{A.69})$$

Donde  $g(\vec{K})$  es la función de correlación del perfil superficial rugoso. Las ecuaciones (A.70) y (A.71) representan las expresiones finales obtenidas por los autores para la variación en la frecuencia de resonancia y en el factor de pérdidas con respecto al de una superficie plana debido al efecto rugoso.

$$\Delta\Omega = -\frac{(\Omega_0)^{3/2} (\rho_l \eta)^{1/2}}{\pi (2\rho_q c_{66})^{1/2}} \left\{ 1 + \sqrt{2} \delta^{-1} S^{-1} \int \frac{d\vec{K}}{(2\pi)^2} |\xi(\vec{K})|^2 K [a(K\delta) - \sqrt{2}/K\delta + \sqrt{2} \cos^2 \phi] \right\} \quad (\text{A.70})$$

$$\Delta\Gamma = \frac{(\Omega_0)^{3/2} (\rho_l \eta)^{1/2}}{\pi (2\rho_q c_{66})^{1/2}} \left\{ 1 + \sqrt{2} \delta^{-1} S^{-1} \int \frac{d\vec{K}}{(2\pi)^2} |\xi(\vec{K})|^2 K [\sqrt{2}/K\delta - b(K\delta)] \right\} \quad (\text{A.71})$$

donde  $a(t)$  y  $b(t)$  son parámetros definidos respectivamente por las ecuaciones:

$$a(t) = \left[ (1 + 4t^{-4})^{-1/2} + 1 \right]^{1/2} \quad (\text{A.72})$$

$$b(t) = \left[ (1 + 4t^{-4})^{-1/2} - 1 \right]^{1/2} \quad (\text{A.73})$$

$\Omega_0$  es la frecuencia de resonancia del cristal de cuarzo en el vacío y está definida por la ecuación:

$$\Omega_0 = \frac{\pi}{d} \sqrt{\frac{c_{66}}{\rho_q}} \quad (\text{A.74})$$

Las expresiones (A.70) y (A.71) se pueden particularizar conociendo el perfil rugoso, y así ser estudiadas más fácilmente para superficies concretas. Los autores concluyen que no sólo el fenómeno del atrapamiento de líquido en las cavidades rugosas juega un papel importante en la respuesta de un cristal resonador de cuarzo en medio líquido con una superficie rugosa. Daikhin y Urbakh afirman que el efecto de las oscilaciones de la presión en el interfaz, ausente en el caso de una superficie lisa, es determinante.

## Apéndice B. Método de Ewald para acelerar la convergencia de los desarrollos en serie de Fourier

### B.1 Introducción

Uno de los mayores inconvenientes del desarrollo en series de Fourier es la lentitud de convergencia. Para obtener una solución con cierto nivel de exactitud se hace necesaria la inclusión de muchísimos términos del desarrollo en serie, hecho que dificulta notablemente el cálculo, resultando indispensable el uso de métodos computacionales de cálculo. La obtención de una solución analítica basada en series de Fourier es inviable, pues si truncamos la serie en los primeros términos, el error cometido sería muy grande.

Advirtiendo estas dificultades, Hasimoto utilizó en el cálculo de la velocidad de un flujo estacionario que atraviesa un array tridimensional de esferas [Hasimoto59] un método para acelerar la convergencia de las series de Fourier basado en la formulación original de Ewald [Ewald21]. La idea es sustituir la serie de Fourier con dos sumatorios complementarios equivalentes que converjan rápidamente. El primero de éstos se realizará sobre la red periódica física, mientras que el segundo se hará sobre el dominio recíproco transformado. De esta manera, y tras aplicar métodos perturbativos y asintóticos [Bender78], se puede llegar a una solución analítica aproximada.

Nuestra intención con este apéndice es arrojar un poco de luz sobre los fundamentos matemáticos que subyacen al método de Ewald.

### B.2 Desarrollo de Ewald

Las series de Fourier que resultan del tratamiento del problema de Stokes que hace Hasimoto tienen la forma:

$$\sigma_m = \sum_{k \neq 0} \frac{e^{-j2\pi\vec{k}\vec{r}}}{k^{2m}} \quad (\text{B.1})$$

para  $m=1,2$ .

Afrontaremos la problemática a partir de la representación integral de  $1/k^{2m}$  descrita en [Born40-1]:

$$\frac{1}{k^{2m}} = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \int_0^\infty e^{-\pi k^2 \beta} \beta^{m-1} d\beta \quad (\text{B.2})$$

Si multiplicamos (B.2) por  $\exp(-j2\pi k \bar{r})$  y sumamos con respecto a  $k$  excepto para  $k \neq 0$  obtenemos la representación integral de una expresión idéntica a (B.1):

$$\sigma_m = \sum_{k \neq 0} \frac{e^{-j2\pi k \bar{r}}}{k^{2m}} = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \sum_{k \neq 0} \int_0^\infty e^{-\pi k^2 \beta - j2\pi k \bar{r}} \beta^{m-1} d\beta \quad (\text{B.3})$$

Transformando un poco (B.3) para incluir el sumatorio para todo  $k$ , queda:

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \int_0^\infty \beta^{m-1} \left[ \sum_k e^{-\pi k^2 \beta - j2\pi k \bar{r}} - 1 \right] d\beta \quad (\text{B.4})$$

Nótese que se resta uno al sumatorio, eliminando así el caso  $k=0$ , para poder ampliarlo a todo  $k$ . Ahora, se aplica el primer paso del método de Ewald propiamente dicho. Se trata de resolver la integral final de (B.4) descomponiéndola en dos partes, una que vaya de 0 a  $\alpha$ , y la otra de  $\alpha$  a  $\infty$ . La constante arbitraria  $\alpha$  se escoge para facilitar los cálculos y normalmente su valor es  $\alpha = \pi d^2$ , siendo  $d$  la distancia entre los centros de las esferas [Sangani88]. Obtenemos como resultado la ecuación de (B.5).

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \left[ \int_0^\alpha \beta^{m-1} \left[ \sum_k e^{-\pi k^2 \beta - j2\pi k \bar{r}} - 1 \right] d\beta + \int_\alpha^\infty \beta^{m-1} \sum_{k \neq 0} e^{-\pi k^2 \beta - j2\pi k \bar{r}} d\beta \right] \quad (\text{B.5})$$

Es posible observar en (B.5) que en la segunda integral no incluye la transformación descrita en (B.4) con el fin de facilitar los cálculos en los pasos posteriores del desarrollo. Tras unas pequeñas modificaciones de (B.5):

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \left[ \int_0^\alpha \beta^{m-1} \sum_k e^{-\pi k^2 \beta - j2\pi k \bar{r}} d\beta - \int_0^\alpha \beta^{m-1} d\beta + \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k \bar{r}} \int_\alpha^\infty \beta^{m-1} e^{-\pi k^2 \beta} d\beta \right] \quad (\text{B.6})$$

Para resolver la primera de las tres integrales se aplicará el segundo paso del método de Ewald: la *transformación theta* basada en la fórmula del sumatorio de Poisson [Courant53, Fernandez86, Borwein98]:

$$\sum_k e^{-\pi k^2 \beta - j2\pi k \bar{r}} = \frac{\theta}{\beta^{\frac{3}{2}-\lambda}} \sum_n e^{-\pi(\bar{r}-\bar{r}_n)^2/\beta} \quad (\text{B.7})$$

Donde  $\lambda$  es 0 para el caso tridimensional y 0.5 para el caso bidimensional y  $\theta$  es el volumen de la celda espacial. A continuación, revisaremos esta transformación que se basa en la conocida fórmula del sumatorio propuesta por Poisson en 1827 y que se describe en la ecuación (B.8).

$$\sum_n \frac{f(n+x+) + f(n+x-)}{2} = \sum_k e^{j2\pi kx} \int_{-\infty}^{\infty} f(t) e^{-j2\pi kt} dt \quad (\text{B.8})$$

si  $f(x) = e^{-s\pi x^2}$ , entonces:

$$\sum_n e^{-s\pi(n+x)^2} = \sum_k e^{j2\pi kx} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-s\pi t^2} e^{-j2\pi kt} dt \quad (\text{B.9})$$

Si se varían los límites de la integral de (B.9), obtenemos la ecuación (B.10):

$$\sum_n e^{-s\pi(n+x)^2} = \sum_k e^{j2\pi kx} 2 \int_0^{\infty} e^{-s\pi t^2} \cos(2\pi kt) dt \quad (\text{B.10})$$

Haciendo el cambio  $x = t\sqrt{\pi s}$  en (B.10) obtenemos:

$$\sum_n e^{-s\pi(n+x)^2} = \sum_k e^{j2\pi kx} \frac{2}{\sqrt{\pi s}} \int_0^{\infty} e^{-x^2} \cos\left(2\pi k \frac{x}{\sqrt{\pi s}}\right) dx \quad (\text{B.11})$$

Simplificando el argumento del coseno nos queda:

$$\sum_n e^{-s\pi(n+x)^2} = \sum_k e^{j2\pi kx} \frac{2}{\sqrt{\pi s}} \int_0^{\infty} e^{-x^2} \cos\left(2\sqrt{\frac{\pi}{s}} kx\right) dx \quad (\text{B.12})$$

Resolviendo la integral de (B.12) con la ayuda del desarrollo 2.2 de Borwein, en el cual se aplica la relación de Legendre [Borwein98]:

$$\sum_n e^{-s\pi(n+x)^2} = \sum_k e^{j2\pi kx} \frac{2}{\sqrt{\pi s}} \frac{\sqrt{\pi}}{2} e^{-\frac{\pi k^2}{s}} \quad (\text{B.13})$$

Finalmente, simplificando (B.13), se obtiene:

$$\sum_n e^{-s\pi(n+x)^2} = \sum_k e^{j2\pi kx} \frac{1}{\sqrt{s}} e^{-\frac{\pi k^2}{s}} \quad (\text{B.14})$$

Tal y como obtuvo Jacobi en 1828 usando teoría de funciones elípticas [Borwein98]. La ecuación (B.14) es la forma general de la ecuación (B.7) aplicada por Ewald [Ewald21, Born40-2]. Así, volviendo al desarrollo que centra el objetivo de este apéndice, si se aplica (B.7) en (B.6) y se resuelve la segunda integral que es inmediata, (B.6) queda como sigue:

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \left[ \int_0^\alpha \beta^{m-1} \left[ \frac{\theta}{\beta^{\frac{3}{2}-\lambda}} \sum_n e^{-\frac{\pi(\bar{r}-\bar{r}_n)^2}{\beta}} \right] d\beta - \frac{\alpha^m}{m} + \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k \bar{r}} \int_\alpha^\infty \beta^{m-1} e^{-\pi k^2 \beta} d\beta \right] \quad (\text{B.15})$$

El objetivo es reducir las integrales de tal manera que se puedan definir en función de una función tabulada y con la que es fácil trabajar como la función gamma incompleta, que se define de la siguiente manera [Born40-1, Hasimoto59]:

$$\phi_\nu(x) = \int_1^\infty \xi^\nu e^{-x\xi} d\xi \quad (\text{B.16})$$

A continuación, con el fin de simplificar la lectura de este apéndice resolveremos las dos integrales de (B.15) por separado. Así, las denominaremos  $\sigma_m^1$  y  $\sigma_m^2$ :

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \left[ \sigma_m^1 - \frac{\alpha^m}{m} + \sigma_m^2 \right] \quad (\text{B.17})$$

Procederemos a resolver  $\sigma_m^1$  por medio del cambio de variable  $\beta = \alpha \zeta$ . Primero se agrupan términos:

$$\sigma_m^1 = \theta \int_0^\alpha \beta^{m-1-\frac{3}{2}} \sum_n e^{-\frac{\pi(\bar{r}-\bar{r}_n)^2}{\beta}} d\beta \quad (\text{B.18})$$

Aplicando el cambio de variable  $\beta = \alpha \zeta$  a (B.18):

$$\sigma_m^1 = \theta \int_\infty^1 \left( \frac{\alpha}{\zeta} \right)^{m-1-\frac{3}{2}} \sum_n e^{-\frac{\pi \zeta (\bar{r}-\bar{r}_n)^2}{\alpha}} d\zeta \left( -\frac{\alpha}{\zeta^2} \right) \quad (\text{B.19})$$

Se hace notar que con el cambio de variables los límites de integración varían. Volviendo a agrupar términos, sacando las constantes fuera de la integral e invirtiendo los límites de integración de (B.19):

$$\sigma_m^1 = \theta \alpha^{m-\frac{3}{2}} \sum_n \int_1^\infty \left(\frac{1}{\xi}\right)^{m-\frac{1}{2}} e^{-\pi \xi (\bar{r} - \bar{r}_n)^2 / \alpha} d\xi \quad (\text{B.20})$$

Se halla en (B.20) la definición de la función gamma incompleta de (B.16), resultando finalmente la integral  $\sigma_m^1$ :

$$\sigma_m^1 = \theta \alpha^{m-\frac{3}{2}} \sum_n \phi_{-m+\frac{1}{2}} \left( \frac{\pi(\bar{r} - \bar{r}_n)^2}{\alpha} \right) \quad (\text{B.21})$$

Se procede ahora a desarrollar  $\sigma_m^2$ , a partir del cambio de variable  $\beta = \alpha \xi$ :

$$\sigma_m^2 = \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k \bar{r}} \int_1^\infty (\alpha \xi)^{m-1} e^{-\pi k^2 (\alpha \xi)} \alpha d\xi \quad (\text{B.22})$$

Notemos que los límites de integración también varían. Agrupando y sacando las constantes fuera de la integral:

$$\sigma_m^2 = \alpha^m \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k \bar{r}} \int_1^\infty \xi^{m-1} e^{-\pi k^2 \alpha \xi} d\xi \quad (\text{B.23})$$

Si nos remitimos a la definición de la función gamma incompleta de (B.16),  $\sigma_m^2$  queda finalmente:

$$\sigma_m^2 = \alpha^m \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k \bar{r}} \phi_{m-1}(\pi k^2 \alpha) \quad (\text{B.24})$$

Volviendo a la ecuación (B.17) y sustituyendo los resultados de (B.21) y (B.24) se obtiene:

$$\sigma_m = \frac{\pi^m}{\Gamma(m)} \left[ \theta \alpha^{m-\frac{3}{2}} \sum_n \phi_{-m+\frac{1}{2}} \left( \frac{\pi(\bar{r} - \bar{r}_n)^2}{\alpha} \right) - \frac{\alpha^m}{m} + \alpha^m \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k \bar{r}} \phi_{m-1}(\pi k^2 \alpha) \right] \quad (\text{B.25})$$

Agrupando términos queda:

$$\sigma_m = \frac{\pi^m \alpha^m}{\Gamma(m)} \left[ \theta \alpha^{-\frac{3}{2}} \sum_n \phi_{-m+\frac{1}{2}} \left( \frac{\pi(\bar{r} - \bar{r}_n)^2}{\alpha} \right) - \frac{1}{m} + \sum_{k \neq 0} e^{-j2\pi k \bar{r}} \phi_{m-1}(\pi k^2 \alpha) \right] \quad (\text{B.26})$$

Como puede observarse se ha cumplido el objetivo, transformando una serie de Fourier con una convergencia lenta (ecuación (B.1)) en dos sumatorios que convergen de una manera mucho más rápida (ecuación (B.26)). Como se adelantó previamente, el primero de estos dos sumatorios se realiza sobre  $n$ , el dominio de la red periódica real y el segundo sobre  $k$ ,

el dominio recíproco transformado. La expresión (B.26) proporciona un buen punto de partida, pero es susceptible de ser reducida aún más se aprovechan las propiedades de la función gamma incompleta de la ecuación (B.16) cuando  $\bar{r} \rightarrow 0$ , es decir, cuando se aplica la aproximación de carga puntual [Hasimoto59].

La función gamma incompleta satisface las fórmulas de recurrencia (B.27) y (B.28):

$$\phi'_v = -\phi_{v+1} \quad (\text{B.27})$$

$$x\phi'_v = e^x - \phi_{v-1} \quad (\text{B.28})$$

y está tabulada para ciertos valores de  $v$  [Born40-1] como se muestra en (B.29), (B.30) y (B.31):

$$\phi_0(x) = \frac{e^{-x}}{x} \quad (\text{B.29})$$

$$\phi_{-\frac{1}{2}}(x) = \frac{\sqrt{\pi}}{\sqrt{x}} \operatorname{erfc}(\sqrt{x}) \quad (\text{B.30})$$

$$\phi_{-1}(x) = -E_i(-x) \quad (\text{B.31})$$

donde  $\operatorname{erfc}(\xi)$  es la función complementaria de error definida por (B.32):

$$\operatorname{erfc}(\xi) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{\xi}^{\infty} e^{-\xi^2} d\xi \quad (\text{B.32})$$

y  $-E_i(-\xi)$  es la integral exponencial:

$$-E_i(-\xi) = \int_{\xi}^{\infty} \frac{e^{-\xi}}{\xi} d\xi \quad (\text{B.33})$$

A partir de estas fórmulas de recurrencia y de un estudio asintótico de la función gamma incompleta cuando  $x$  tiende a 0 se obtiene [Born40-1]:

$$\phi_{-\frac{1}{2}}(x) = \frac{\sqrt{\pi}}{\sqrt{x}} - 2 + \frac{2x}{3} + O(x^2) \quad (\text{B.34})$$



$$\phi_{\frac{3}{2}}(x) = 2 - 2\sqrt{x\pi} + 2x + O(x^2) \quad (\text{B.35})$$

$$\phi_{-1}(x) = \gamma - \log x + x + O(x^2) \quad (\text{B.36})$$

$$\phi_{-2}(x) = 1 - x(1 - \gamma - \log x) + O(x^2) \quad (\text{B.37})$$

donde  $\gamma = 0,577215$  es la constante de Euler.

Las ecuaciones (B.34)-(B.37) se han obtenido aplicando la teoría de la perturbación y son muy útiles para calcular los valores de  $\sigma_1$  y  $\sigma_2$  en el desarrollo presentado en la aportación 3 de este trabajo de investigación, puesto que nos permiten aproximar la función gamma incompleta por otras mucho más sencillas

Otra propiedad muy útil de la función gamma incompleta de Euler, es que tiende a cero cuando  $x$  tiende a infinito, acelerando de esta manera la convergencia de los sumatorios en el dominio transformado  $k$ .

Concluyendo, la técnica de Ewald transforma un sumatorio de Fourier que convergen lentamente en un doble sumatorio basado en la función gamma incompleta. Esta técnica permite obtener desarrollos analíticos en problemas que, de otra manera, sólo admitirían soluciones numéricas.



## Apéndice C. Introducción al Método de los Elementos Finitos

### C.1 Introducción

El método de los elementos finitos (FEM, Finite element Method), surgió debido a la necesidad de resolver problemas muy complejos de análisis de estructuras en ingeniería civil y aeronáutica. Su origen se remonta a los trabajos de Alexander Hrennikoff (1941) y Richard Courant (1942). Si bien afrontaron el problema desde una perspectiva muy diferente, el trabajo de estos dos matemáticos comparte una característica fundamental: el mallado de un dominio continuo y la división de éste en un conjunto de sub-dominios discretos. El método siguió evolucionando durante las décadas de los 50 y los 60 gracias a los trabajos de investigación desarrollados principalmente en la universidad de Berkeley. Las bases teóricas del método fueron definitivamente fijadas con la publicación de “*An Analysis of The Finite Element Method*” (1973), de Strang y Fix. Actualmente, el método de los elementos finitos se ha generalizado como una rama de las matemáticas aplicadas para el modelado numérico de sistemas físicos en una gran variedad de disciplinas: mecánica de fluidos, electromagnetismo, etc...

El término FEM engloba realmente un amplio espectro de técnicas numéricas que comparten características comunes que se describirán a continuación. El principal objetivo del Método de los Elementos Finitos es el de simular el comportamiento de sistemas físicos. Esto se realiza usando modelos, y por eso a menudo la técnica es conocida como “model-based simulation”. La pieza central del proceso es el sistema físico a modelar. Este sistema se idealiza y discretiza para obtener el modelo discreto. Posteriormente, se resuelven numéricamente las ecuaciones generadas por el modelo discreto, obteniéndose soluciones discretas.

La teoría del método de los elementos finitos se basa principalmente en el simple hecho de que la integral de una función medible sobre un dominio arbitrario puede ser dividida en la suma de integrales sobre una serie de dominios arbitrarios disjuntos cuya unión es el dominio original. Entonces, el análisis de un problema puede, literalmente, resolverse de un modo local sobre un sub-dominio si se consigue hacer éste lo suficientemente pequeño como para argumentar que el comportamiento de la solución puede ser representada por una función polinomial de cierto grado. Esta propiedad de la suma de integrales se explota en cada implementación del método de los elementos finitos. Permite focalizar la

atención en un dominio finito (elemento finito) típico y desarrollar una aproximación a la solución independientemente de la localización de éste [Oden91].

Esta simple propiedad integral tiene importantes implicaciones en física y en la mayoría de los problemas de mecánica en dominios continuos. Las leyes clásicas de la mecánica son globales, en el sentido de que son leyes integrales aplicadas a una masa de material, fluido o sólido, dado. Como estas leyes son axiomas fundamentales de la física, deben cumplirse para cada porción finita de material (elemento finito) que forma parte del continuo. De nuevo, es posible plantear un método para la resolución de un problema en un dominio físico continuo como el estudio de las leyes físicas en las diferentes regiones que lo componen

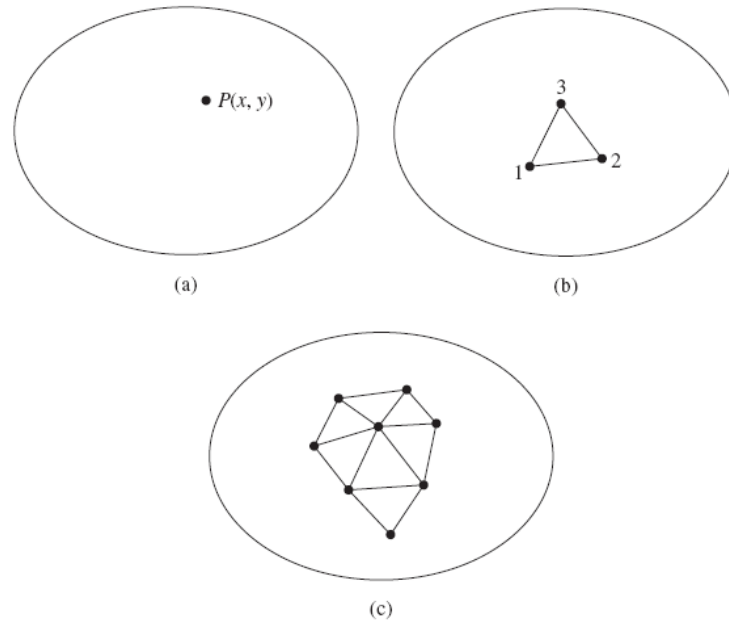
## **C.2 Características principales del método de los elementos finitos**

Las principales características del método de los elementos finitos son:

1. El método es aplicable a geometrías arbitrarias. En principio el método de los elementos finitos puede ser aplicado a dominios de forma arbitraria y con condiciones de contorno diversas.
2. El método los elementos finitos puede trabajar con mallas no estructuradas. A pesar de que se tiende a evitar el uso de este tipo de mallas por su alto coste computacional, no existe ninguna razón por la que el método de los elementos finitos no pueda trabajar con mallas no estructuradas. Esto significa, en principio, que los elementos finitos pueden situarse libremente en el dominio, permitiendo modelar de forma precisa la mayoría de los tipos de geometrías complejas que se presentan en la naturaleza.
3. Robustez. Como se ha explicado anteriormente, en el método de los elementos finitos las contribuciones de las aproximaciones locales en los elementos individuales se ensamblan de un modo sistemático para llegar a una aproximación global de la solución de una ecuación diferencial. Generalmente, se considera una aproximación muy estable, muy poco sensible a singularidades o distorsiones en la malla en contraposición al método de las diferencias finitas.

### C.3 Descripción general del método

La mejor manera de describir el método de los elementos finitos es con un ejemplo de aplicación. Comenzaremos introduciendo la terminología general del método con ayuda de la figura C.1.



**Figura C. 1.** (a) Dominio bidimensional de la variable  $\phi(x, y)$ . (b) Elemento finito de tres nodos definido en el dominio (c) Elementos adicionales que muestran una parte de la malla del dominio

La figura C.1(a) muestra un volumen de un material de propiedades físicas conocidas. El volumen representa el dominio asociado a un problema de frontera. Por simplicidad y sin pérdida de generalidad, asumiremos un caso bidimensional en el que pretendemos conocer el valor de la variable  $\phi(x, y)$  para cada punto  $P(x, y)$  del dominio. Se supondrán conocidas la ecuación o ecuaciones que gobiernan el comportamiento de  $\phi(x, y)$  en el dominio. Estas ecuaciones deben satisfacerse exactamente en cada uno de los puntos  $P(x, y)$ . Notemos que esto implica la obtención de una solución matemática exacta, es decir, la obtención de una solución cerrada en función de las variables independientes  $x$  e  $y$ . En los problemas prácticos, el dominio puede ser geoméricamente muy complejo. También, es posible que las ecuaciones

que gobiernen el comportamiento de  $\phi(x, y)$  sean demasiado complejas para obtener una solución analítica exacta. Por ello, las soluciones aproximadas basadas en métodos numéricos se usan muy a menudo en los análisis de problemas complejos en física o ingeniería. El método de los elementos finitos es una técnica potente para obtener este tipo de soluciones aproximadas con una precisión aceptable.

En la figura C.1(b) podemos observar un pequeño elemento triangular que delimita un sub-dominio finito en el área de interés. Se trata de un elemento finito. No se debe confundir este elemento de dimensiones reducidas con un diferencial de superficie de tamaño  $dx \cdot dy$ . Como se ha considerado este ejemplo de naturaleza bidimensional, se asume que la ecuación diferencial que gobierna el problema no tiene dependencia con la variable  $z$ .

Los vértices de este triángulo están numerados para indicar que estos puntos son nodos. Un nodo es un punto específico en el elemento finito en el cual los valores de las variables de campo son explícitamente calculados. Los nodos exteriores están localizados en las fronteras del elemento finito y pueden usarse para conectar un elemento con su adyacente. Los nodos que no se encuentran en las fronteras del elemento se denominan nodos interiores y no pueden ser conectados con ningún otro elemento. El elemento triangular de la figura C.1(b) tiene sólo nodos exteriores.

Como los valores de las variables se calculan solamente en los nodos, es necesario aproximar la solución en el resto de puntos del elemento mediante la interpolación de los valores en los nodos. Esta es una de las características principales del método de los elementos finitos. Para el triángulo de tres nodos del ejemplo, los nodos son todos exteriores, y el valor de  $\phi(x, y)$  para cualquier otro punto del elemento viene descrito por la ecuación (C.1).

$$\phi(x, y) = N_1(x, y)\phi_1 + N_2(x, y)\phi_2 + N_3(x, y)\phi_3 \quad (\text{C.1})$$

donde  $\phi_1$ ,  $\phi_2$  y  $\phi_3$  son los valores de  $\Phi(x, y)$  en los nodos y  $N_1$ ,  $N_2$  y  $N_3$  son las funciones de interpolación, conocidas como *funciones de forma*. En la aproximación por elementos finitos, los valores de  $\Phi(x, y)$  en los nodos se consideran constantes desconocidas que deben ser determinadas. Las *funciones de forma* son usualmente, funciones polinomiales de variables independientes, derivadas para satisfacer ciertas condiciones requeridas en los nodos. Es importante entender que las *funciones de forma* son predeterminadas, es decir, son funciones conocidas de variables

independientes. Estas funciones describen la variación de la variable  $\Phi(x,y)$  en el elemento finito.

El elemento triangular descrito por la ecuación (C.1) tiene tres *grados de libertad*, ya que son necesarios tres valores nodales de la variable  $\Phi(x,y)$  para describir la solución en el elemento. En este ejemplo, el campo que se desea calcular es escalar. En el caso de que el campo fuese vectorial serían necesarios dos o tres valores por nodo para describir completamente la solución. En general, el número de *grados de libertad* asociados con un elemento finito es igual al producto del número de nodos por el número de variables de campo (y posiblemente sus derivadas) que se deben calcular en cada nodo.

Cuando es necesario forzar que dos o más *grados de libertad* de diferentes nodos tomen el mismo valor (desconocido), se dice que los *grados de libertad están acoplados*. Un conjunto de grados de libertad acoplados contiene un *grado de libertad principal* y uno o más *grados de libertad* adicionales. El acoplamiento provoca que sólo el *grado de libertad principal* quede almacenado en la matriz de ecuaciones del análisis. El valor calculado para cada grado de libertad principal, será asignado al resto de grados de libertad en el conjunto cuando se calcula la solución. Las aplicaciones típicas de los grados de libertad acoplados incluyen la creación de regiones que se comportan como cuerpos rígidos en modelos mecánicos o el modelado de regiones equipotenciales eléctricas.

Para conocer cómo esta aproximación basada en un solo elemento funciona para el dominio entero observaremos la figura C.1(c). Cada elemento se conecta a través de sus nodos exteriores con otros elementos. Las ecuaciones que definen los elementos finitos se formulan de manera que el valor de la variable de campo  $\Phi(x,y)$  en cualquier conexión es la misma para cada elemento conectado al nodo. Así, la continuidad de la variable de campo en los nodos está asegurada. De hecho, las formulaciones de elementos finitos se realizan de tal manera que la continuidad de las variables de campo a través de las fronteras entre elementos esté asegurada. Esta característica evita la posibilidad físicamente inaceptable de que se produzcan saltos o vacíos en el dominio. En un problema de transmisión de calor, esta discontinuidad se manifestaría como dos temperaturas diferentes en el mismo punto físico.

Una vez se ha mallado completamente el dominio físico, se definen las condiciones de contorno. La aplicación de unas condiciones de contorno correctas es fundamental para obtener una solución exacta y única. La redundancia en el planteamiento de las condiciones de contorno, puede producir resultados sin sentido físico. Si no se especifican las suficientes

condiciones de contorno, el problema puede no quedar bien definido, con la consecuente falta de convergencia del método.

Finalmente, las ecuaciones que gobiernan el comportamiento de la variable o variables incógnita para cada elemento se ensamblan en forma matricial para todo el dominio y se resuelven mediante métodos algebraicos. Existen numerosas publicaciones que tratan de la resolución de este tipo de sistemas algebraicos [Hutton04, Zienkiewicz67-1, Zienkiewicz67-2].

## C.4 Campos acoplados

Los análisis de campos acoplados son útiles para resolver problemas donde existen interacciones entre diferentes fenómenos físicos en principio no relacionados. Existen numerosos ejemplos tales como: un campo eléctrico interactuando con un campo magnético, un campo de temperatura interactuando con un fluido o un campo magnético produciendo fuerzas mecánicas. En el presente trabajo de investigación, se trabaja con el efecto piezoeléctrico, en el que, para ciertos materiales, un campo eléctrico interactúa produciendo desplazamientos mecánicos y viceversa. Para resolver este tipo de problemas mediante el uso del método de los elementos finitos, existen básicamente dos procedimientos diferenciados. Éstos se distinguen por la formulación usada para desarrollar las matrices de ecuaciones:

1. Acoplamiento fuerte. También denominado acoplamiento simultáneo o completo. En este caso, la matriz de ecuaciones que definen el método están descritas en la ecuación (C.2). En esta ecuación, se representa el acoplamiento de dos grados de libertad  $\{X_1\}$  y  $\{X_2\}$  de dos campos de naturaleza física diferentes representados por los subíndices 1 y 2. Las sub-matrices diagonales  $[K_{21}]$  y  $[K_{12}]$  representan los efectos de acoplamiento. Las excitaciones que inducen la actividad en ambos campos están representadas por  $\{F_1\}$  y  $\{F_2\}$ . Como se puede observar, debido a la naturaleza directa de este acoplamiento, se obtendrán soluciones numéricas tras la primera iteración en el proceso de solución.

$$\begin{bmatrix} [K_{11}] & [K_{12}] \\ [K_{21}] & [K_{22}] \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \{X_1\} \\ \{X_2\} \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} \{F_1\} \\ \{F_2\} \end{Bmatrix} \quad (\text{C.2})$$



2. Acoplamiento débil. También conocido como acoplamiento secuencial. Este proceso viene gobernado por la ecuación (C.3). En este caso, el efecto de acoplamiento viene descrito en la dependencia implícita de las sub-matriz  $[K_{11}]$  y la excitación  $\{F_1\}$  con el grado de libertad  $\{X_2\}$  y en la dependencia de  $[K_{22}]$  y la excitación  $\{F_2\}$  con el grado de libertad  $\{X_1\}$ , ya que las sub-matrices diagonales se anulan. Si se usa este método, se requieren al menos dos iteraciones del proceso resolutivo para obtener una respuesta.

$$\begin{bmatrix} [K_{11}(\{X_1\},\{X_2\})] & [0] \\ [0] & [K_{22}(\{X_1\},\{X_2\})] \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \{X_1\} \\ \{X_2\} \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} \{F_1(\{X_1\},\{X_2\})\} \\ \{F_2(\{X_1\},\{X_2\})\} \end{Bmatrix} \quad (C.3)$$

## C.5 Interacción líquido-estructura (FSI)

Las interacciones líquido-estructura (conocidas en inglés con las siglas FSI "Fluid Structure Interaction") ocurren cuando un fluido interactúa con una estructura sólida ejerciendo presión sobre ella. Entonces, se produce una deformación del sólido alterándose por tanto las condiciones de contorno del propio líquido. Tradicionalmente, los sistemas dinámicos fluido y sólido se han resuelto independientemente. Sin embargo, en problemas donde existe suficiente acoplamiento entre los dos sistemas, esta separación no es posible. El sistema resultante es siempre muy complejo y difícil de resolver analíticamente. En este punto, las aproximaciones numéricas como el método de los elementos finitos son esenciales para predecir el comportamiento de estos sistemas.

### C.5.1 Clasificación de los problemas FSI

Normalmente, los problemas de interacción líquido-estructura se clasifican en dos tipos:

1. Problemas con acoplamiento de un sentido. En este tipo de problemas, las variaciones que se producen en uno de los dominios alteran el estado del otro, pero no en sentido contrario. Por ejemplo, los gradientes de temperatura generados en un fluido pueden alterar la distribución térmica de un sólido que lo contenga. Sin embargo, las alteraciones en el sólido no producirán efectos medibles en el líquido. El caso inverso también se puede dar; por ejemplo, una superficie sólida y rígida que oscila con una amplitud y frecuencia determinada en contacto con un

líquido. El movimiento de la superficie generará un flujo en el líquido, mientras que este flujo no afectará el movimiento oscilatorio del sólido. En estos casos, el problema se resuelve normalmente de forma secuencial. Es decir, primero se resuelven las ecuaciones que gobiernan el comportamiento en el medio en el que se inicia la interacción, para posteriormente transferir los resultados obtenidos en el interfaz al segundo medio como condiciones de contorno y resolver el problema completo.

2. Problemas con acoplamiento de doble sentido. Este tipo de problemas es mucho más complejo, puesto que las interacciones entre los medios son más fuertes. Las alteraciones que se producen en un medio afectan al otro y viceversa. Por ejemplo, en el caso de una superficie oscilante viscoelástica en contacto con un medio líquido, el movimiento del sólido inducirá un flujo en el medio líquido, que a su vez afectará al sólido deformándolo. Para resolver estos problemas, es necesario transferir los resultados calculados en el interfaz sólido-líquido para cada dominio en ambos sentidos.

## **Apéndice D. Introducción al Método de los Volúmenes Finitos**

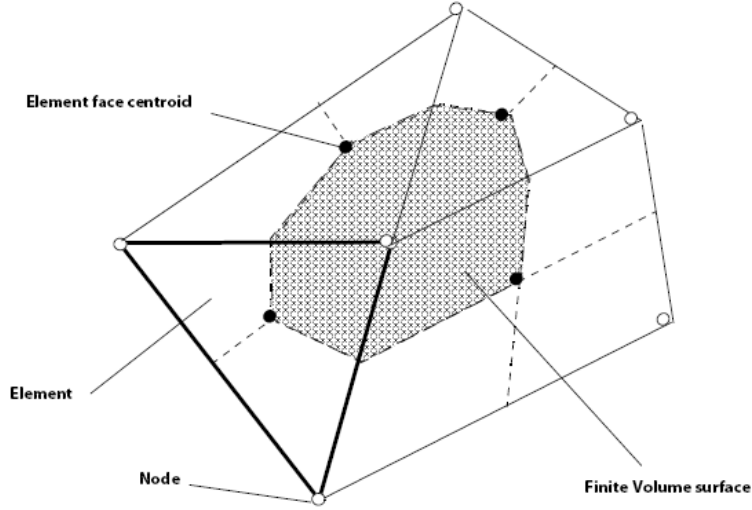
### **D.1 Introducción**

Las soluciones analíticas para las ecuaciones de Navier-Stokes sólo existen para los problemas de mecánica de fluidos más simples en condiciones ideales. Para obtener las soluciones de flujos reales se debe adoptar una aproximación numérica donde las ecuaciones diferenciales que gobiernan el comportamiento de estos fenómenos se reemplacen por aproximaciones algebraicas que pueden ser resueltas con la ayuda del cálculo computacional. En este apéndice, se tratará de introducir al lector al método de los volúmenes finitos. Este método, es uno de los más usados en la actualidad para resolver problemas de mecánica de fluidos. Asimismo, este método es el empleado en el presente trabajo de investigación para resolver el problema de una superficie rugosa oscilante enfrentada a un fluido viscoso.

### **D.2 Discretización de las ecuaciones de Navier-Stokes**

El uso del método de los elementos finitos implica la discretización del dominio espacial del problema en un número finito de volúmenes de control formando una malla. Las ecuaciones de Navier-Stokes se integran sobre cada volumen de control, manteniendo la ley de la conservación de las variables fundamentales (masa, momento, energía) para cada volumen de control en un sentido discreto [Versteeg95]. En la siguiente figura, podemos observar el esquema de una malla en la que se representa un volumen de control sombreado.

Viendo la figura D.1, está claro que cada nodo está rodeado por un conjunto de superficies las cuales forman el volumen de control. Todas las variables y propiedades del fluido almacenadas son las registradas en los nodos del elemento. El sistema de ecuaciones de Navier-Stokes en su forma típica, se puede expresar mediante las ecuaciones de conservación de la masa (D.1), conservación del momento (D.2) y conservación de la energía (D.3) en coordenadas cartesianas [Ansys11].



**Figura D.1.** Representación de un elemento aislado de una malla con la superficie de su volumen finito asociado.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho U_j) = 0 \quad (\text{D.1})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho U_j) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho U_j U_i) = -\frac{\partial P}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \mu_{\text{eff}} \left( \frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right) \right) \quad (\text{D.2})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \phi) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho U_j \phi) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \Gamma_{\text{eff}} \left( \frac{\partial \phi}{\partial x_j} \right) \right) + S_\phi \quad (\text{D.3})$$

Es posible integrar estas ecuaciones sobre un volumen de control y aplicar el teorema de la divergencia de Gauss para transformar algunas integrales de volumen en integrales de superficie. Para volúmenes de control que no se deforman con el tiempo, las derivadas temporales se pueden sacar fuera de las integrales de volumen y las ecuaciones (D.1), (D.2) y (D.3) quedan de la siguiente forma:

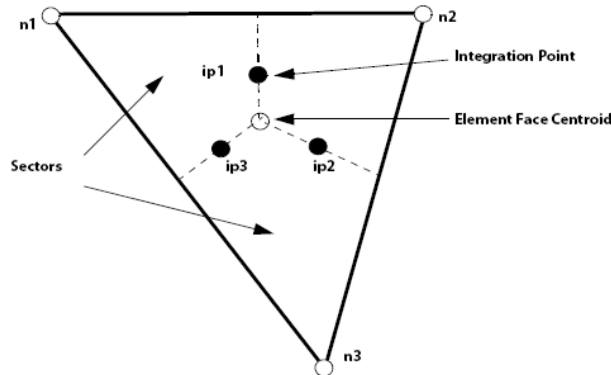
$$\frac{d}{dt} \int_V \rho dV + \int_S \rho U_j dn_j = 0 \quad (D.4)$$

$$\frac{d}{dt} \int_V \rho U_j dV + \int_S \rho U_j U_i dn_j = - \int_S P dn_j + \int_S \mu_{eff} \left( \frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right) dn_j + \int_V S_{U_i} dV \quad (D.5)$$

$$\frac{d}{dt} \int_V \rho \phi dV + \int_S \rho U_j \phi dn_j = \int_S \Gamma_{eff} \left( \frac{\partial \phi}{\partial x_j} \right) dn_j + \int_V S_\phi dV \quad (D.6)$$

Donde  $V$  y  $S$  se corresponden respectivamente con el volumen y la superficie de integración;  $dn_j$  son las componentes cartesianas del vector normal a la superficie de integración. Las integrales de superficie representan flujos, mientras que las integrales de volumen representan fuentes o sumideros. Posteriormente en este apéndice, se presentarán modificaciones a estas ecuaciones para incluir los efectos de la deformación de la malla.

El primer paso para resolver estas ecuaciones continuas numéricamente es aproximarlas usando funciones discretas. Consideremos un elemento de la malla aislado como el de la figura D.2.



**Figura D.2.** Representación de un elemento aislado de una malla con sus puntos de integración indicados.

Las integrales de superficie se discretizan en los puntos de integración para completar la conversión de la ecuación continua en su forma discreta. Los puntos de integración,  $ipn$ , se localizan en el centro de cada superficie

de un elemento tridimensional que rodea al volumen de control. Las ecuaciones discretizadas quedan de la forma:

$$V \left( \frac{\rho - \rho^0}{\Delta t} \right) + \sum_{ip} (\rho U_j \Delta n_j)_{ip} = 0 \quad (D.7)$$

$$V \left( \frac{\rho U_i - \rho^0 U_i^0}{\Delta t} \right) + \sum_{ip} m_{ip} (U_i)_{ip} = \sum_{ip} (P \Delta n_i)_{ip} + \sum_{ip} \left( \mu_{eff} \left( \frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right) \Delta n_j \right)_{ip} + S_{U_i} V \quad (D.8)$$

$$V \left( \frac{\rho \phi - \rho^0 \phi^0}{\Delta t} \right) + \sum_{ip} m_{ip} \phi_{ip} = \sum_{ip} \left( \Gamma_{eff} \frac{\partial \phi}{\partial x_j} \Delta n_j \right)_{ip} + S_{\phi} V \quad (D.9)$$

donde  $V$  es el volumen de control, el subíndice  $ip$  denota un punto de integración, y el sumatorio se realiza sobre todos los puntos de integración del volumen finito. El superíndice  $o$  se refiere al instante anterior, mientras que  $\Delta n_j$  es el vector discreto perpendicular a la superficie,  $\Delta t$  es el paso temporal y  $m_{ip}$  es el flujo de masa discreto a través de la superficie del volumen finito y viene dado por la ecuación:

$$m_{ip} = (\rho U_j \Delta n_j)_{ip} \quad (D.10)$$

Hemos de hacer notar que en las (D.7), (D.8) y (D.9) se ha usado la llamada "*aproximación de primer orden de Euler*", para aproximar los términos transitorios de la ecuación de Navier-Stokes. Se conoce como términos transitorios, a aquellos que tienen la forma de una derivada temporal de una integral volumétrica. En el siguiente epígrafe, se mostrará otra aproximación muy usada habitualmente en la aproximación del término transitorio conocida como: "*aproximación de segundo orden de Euler*".

### D.2.1 Discretización de los términos transitorios

El término transitorio tipo se puede dividir en dos sub-términos como se muestra en la ecuación (D.11):

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_V \rho \phi dV = V \left( \rho^0 \frac{\partial \phi}{\partial t} + \phi \frac{\partial \rho}{\partial t} \right) \quad (D.11)$$

Si usamos la "aproximación de primer orden de Euler", las derivadas temporales aproximan de la forma:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{\phi - \phi^0}{\Delta t} \quad (D.12)$$

En este caso, la ecuación (D.11) quedaría de la forma:

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_V \rho \phi dV = V \left( \frac{\rho \phi - \rho^0 \phi^0}{\Delta t} \right) \quad (D.13)$$

Esta aproximación es muy robusta y además es conservativa en el tiempo, pero sólo tiene una precisión de primer orden en el tiempo [Ansys11]. Por ello puede inducir errores numéricos de difusión, que se describirán en un epígrafe posterior.

Si usamos la "aproximación de segundo orden de Euler", las derivadas temporales aproximan con [Ansys11]:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{1}{\Delta t} \left( \frac{3}{2} \phi - 2\phi^0 + \frac{1}{2} \phi^{00} \right) \quad (D.14)$$

donde  $\phi^{00}$  representa el valor de la variable para el instante de tiempo dos pasos anterior al actual. Esta aproximación también es robusta y conservativa el tiempo. Además, tiene una precisión de segundo orden, pero puede ocasionar algunos efectos no físicos en la solución (dispersión numérica).

### D.2.2 Funciones de forma

Los valores de las soluciones se almacenan en los nodos de la malla. Sin embargo, algunos términos en las ecuaciones de Navier-Stokes requieren evaluar gradientes en los puntos de integración. Por esta razón, en el método de los volúmenes finitos es necesaria una forma de calcular la variación de las magnitudes dentro de un elemento. Esto es posible usando funciones de forma. Así, una variable  $\Phi$  variará dentro de un elemento según la ecuación [Ansys11]:

$$\phi = \sum_{i=1}^{N_{nodo}} N_i \phi_i \quad (D.15)$$

donde  $N_i$  es la función de forma para el nodo  $i$  y  $\phi_i$  es el valor de  $\phi$  en el nodo  $i$ . El sumatorio de la ecuación (D.15) se realiza para todos los nodos

de un elemento. Las principales propiedades que deben cumplir las funciones de forma son las que se indican las ecuaciones (D.16) y (D.17) [Ansys11]:

$$\phi = \sum_{i=1}^{N_{\text{nodo}}} N_i = 1 \quad (\text{D.16})$$

$$N_i = \begin{cases} 1 & i = j \\ 0 & i \neq j \end{cases} \quad (\text{D.17})$$

Las funciones de forma también se usan para calcular diversas cantidades geométricas como por ejemplo los vectores de superficie. Esto es posible, debido a que la ecuación (D.15) también se cumple para las coordenadas espaciales:

$$y = \sum_{i=1}^{N_{\text{nodo}}} N_i y_i \quad (\text{D.18})$$

### D.2.3 Discretización de los términos de difusión

Se conoce como términos de difusión, aquellos términos de la ecuación de Navier-Stokes que tienen la forma de una derivada espacial. Las funciones de forma descritas en el apartado anterior, pueden ser usadas para discretizar los términos de difusión. Por ejemplo, una derivada en la dirección  $X$  en el punto de integración  $ip$  se puede discretizar según la ecuación:

$$\left( \frac{\partial \phi}{\partial x} \right)_{ip} = \sum_n \left( \frac{\partial N_n}{\partial x} \right)_{ip} \phi_n \quad (\text{D.19})$$

El sumatorio en  $n$  se refiere a todas las funciones de forma del elemento en cuestión. Las derivadas cartesianas de las funciones de forma se pueden expresar en términos de sus derivadas locales por medio de la matriz de transformación Jacobiana como se puede ver en la ecuación (D.20).



$$\begin{bmatrix} \frac{\partial N}{\partial x} \\ \frac{\partial N}{\partial y} \\ \frac{\partial N}{\partial z} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\partial x}{\partial s} & \frac{\partial y}{\partial s} & \frac{\partial z}{\partial s} \\ \frac{\partial x}{\partial t} & \frac{\partial y}{\partial t} & \frac{\partial z}{\partial t} \\ \frac{\partial x}{\partial u} & \frac{\partial y}{\partial u} & \frac{\partial z}{\partial u} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} \frac{\partial N}{\partial s} \\ \frac{\partial N}{\partial t} \\ \frac{\partial N}{\partial u} \end{bmatrix} \quad (\text{D.20})$$

### D.2.4 Discretización del término gradiente de presión

La integral de superficie del gradiente de presión en las ecuaciones de Navier-Stokes implica la evaluación de la expresión:

$$(P \Delta n_{ip})_{ip} \quad (\text{D.21})$$

El valor de  $P_{ip}$  se evalúa usando funciones de forma según la ecuación:

$$P_{ip} = \sum_n N_n(s_{ip}, t_{ip}, u_{ip}) P_n \quad (\text{D.22})$$

Como sucede con los términos de difusión, las funciones de forma usadas para interpolar  $P$  se evalúan en cada punto de integración.

### D.2.5 Discretización del término de advección

Se denomina términos de advección, a aquellos que tienen la forma de una integral de superficie de una función dependiente de la velocidad y la densidad. Ciertos términos de advección, son función además de una variable adicional. Para completar la discretización del término de advección, es necesario calcular el valor de esta variable en los puntos de integración. Las aproximaciones usadas en este trabajo para discretizar éste término tienen la forma de la ecuación (D.23) [Ansys11]:

$$\phi_{ip} = \phi_{ip} + \beta \nabla \phi \cdot \Delta \vec{r} \quad (\text{D.23})$$

Donde  $\Phi_{ip}$  es el valor de la función  $\Phi$  en el nodo más próximo al punto de integración en la dirección contraria al flujo, y  $\vec{r}$  es el vector que une este nodo con el punto de integración.  $\nabla \phi$  es el gradiente de la función  $\phi$

calculado en el nodo en cuestión y  $\beta$  es el valor de una constante que difiere para los distintos tipos de aproximaciones que se pueden realizar.

Si suponemos  $\beta = 0$ , estaremos aplicando la denominada "aproximación de diferencias de primer orden". Esta aproximación es numéricamente estable y garantiza la ausencia de efectos numéricos no físicos típicos de la dispersión numérica, sin embargo, es susceptible del fenómeno conocido como error de difusión numérica. Los diferentes tipos de errores numéricos que son inherentes al método de los volúmenes finitos se describirán en un epígrafe posterior.

Si se varía el valor de  $\beta$  entre 0 y 1 los errores de difusión del aproximación anterior se reduce. Éste algoritmo se conoce como "aproximación con corrección de la advección numérica". Si se escoge  $\beta = 1$ , estaremos trabajando con algoritmo de segundo orden. Éste algoritmo es menos robusto que el anterior y puede padecer por tanto problemas de dispersión numérica.

El algoritmo más estable y preciso es el conocido como "aproximación de alta resolución". Se basa en el cálculo local del valor de  $\beta$ . El algoritmo calcula el valor de  $\beta$  más próximo a 1 evitando errores numéricos para cada elemento de la malla [Ansys11].

### D.3 Inclusión de los efectos de deformación en la malla

Las ecuaciones integrales presentadas en (D.4), (D.5) y (D.6) deben ser modificadas en el caso de que los volúmenes de control se deformen. Estas modificaciones se derivan de la aplicación de la regla de Leibniz [Ansys11]:

$$\frac{d}{dt} \int_{V(t)} \phi dV = \int_V \frac{\partial \phi}{\partial t} dV + \int_S \phi W_j dn_j \quad (D.24)$$

donde  $W_j$  es la velocidad de la frontera del volumen de control. Las ecuaciones de Navier-Stokes en su forma diferencial (ver ecuaciones (D.1) (D.2) y (D.3)), pueden ser integradas de nuevo, aplicando esta vez la regla de Leibniz, dando como resultado:

$$\frac{d}{dt} \int_{V(t)} \rho dV + \int_S \rho(U_j - W_j) dn_j = 0 \quad (D.25)$$

$$\frac{d}{dt} \int_{V(t)} \rho U_j dV + \int_S \rho(U_j - W_j) U_i dn_j = - \int_S P dn_j + \int_S \mu_{eff} \left( \frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right) dn_j + \int_V S_{U_i} dV \quad (D.26)$$

$$\frac{d}{dt} \int_{V(t)} \rho \phi dV + \int_S \rho (U_j - W_j) \phi dn_j = \int_S \Gamma_{eff} \left( \frac{\partial \phi}{\partial x_j} \right) dn_j + \int_V S_\phi dV \quad (D.27)$$

Las nuevas ecuaciones (D.25), (D.26) y (D.27) tienen en cuenta las posibles deformaciones del dominio donde se plantea el problema. Los términos transitorios se corresponden con el ratio de cambio de almacenamiento en el volumen de control ahora deformable. La velocidad de la malla se introduce en los términos de advección. Se pueden producir errores numéricos si la variación de volumen introducida en los términos transitorios no es consistente con el volumen contenido por las fronteras superficiales del volumen de control. Para evitar este efecto, ha de asegurarse que se cumple la ley geométrica de conservación de la ecuación (D.28).

$$\frac{d}{dt} \int_{V(t)} dV = \int_S W_j dn_j \quad (D.28)$$

## D.4 Errores de discretización

Debido a su naturaleza de aproximación numérica, el método de los volúmenes finitos introduce un grado de error en la solución. Estos errores pueden producirse al truncar términos de series de aproximación o al escoger determinadas formas de discretización. Muchos de estos efectos se pueden reducir notablemente si se comprenden sus causas. Existen principalmente dos tipos de error: la dispersión numérica y la difusión numérica.

### D.4.1 Difusión numérica

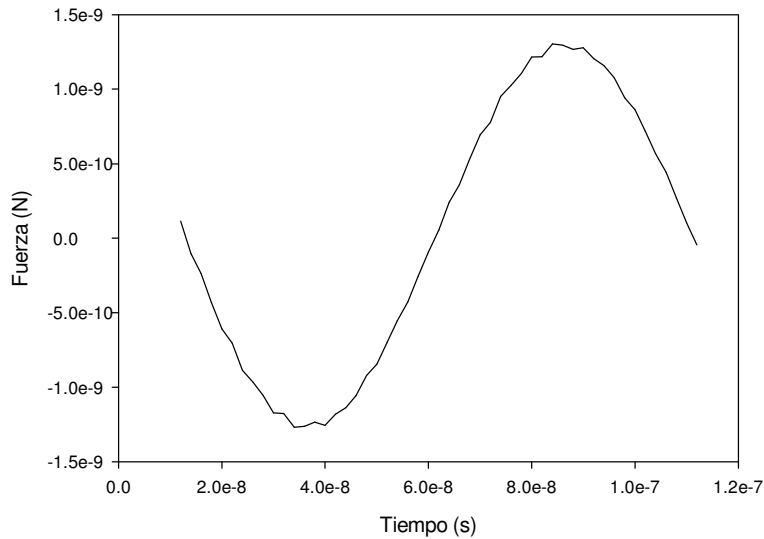
La difusión numérica aparece normalmente cuando el término de advección se aproxima usando un algoritmo de primer orden, como por ejemplo, la "aproximación de diferencias de primer orden". Este error se manifiesta como una ligera deformación del valor de la solución que aumenta con la distancia recorrida por el flujo. Se debe a que en la discretización del término de advección se usa como base fundamental de

cálculo del valor del nodo anterior en la dirección contraria al flujo. Si el flujo no es perfectamente perpendicular a los ejes de la malla el error aumenta.

#### D.4.2 Dispersión Numérica

La dispersión numérica aparece normalmente cuando se usan aproximaciones de segundo orden en el término de advección. El efecto de la dispersión numérica es la aparición de oscilaciones en la solución como se puede ver en la figura D.3. Esta figura se corresponde con la fuerza de arrastre experimentada por una superficie rugosa oscilante en un medio líquido. En los picos de la función se pueden observar las oscilaciones debidas al efecto de dispersión numérica.

Efecto Dispersión Numérica



**Figura D.3.** Fuerza de arrastre calculada para un modelo de esferas por el método de los volúmenes finitos afectada por el fenómeno del error de dispersión numérica.

## D.5 Malla

Se define malla como el conjunto de elementos o sub-dominios en los que se ha dividido el dominio del problema que se pretende abordar numéricamente. Existen diversas clasificaciones de varias. La más sencilla, es la clasificación basada en la conectividad, es decir en cómo unos elementos se conectan con otros. Según esta clasificación las mallas se dividen en:

- Mallas estructuradas. Son aquellas que se caracterizan por una conectividad regular entre sus elementos, que se puede expresar como una matriz tridimensional. Generalmente, en este tipo de mallas se utilizan elementos hexaedros. Los recursos computacionales necesarios para trabajar con este tipo de mallas son reducidos debido a la regularidad del sistema.
- Mallas no estructuradas. Son aquellas que se caracterizan por una conectividad irregular que no puede expresarse de manera sencilla con una matriz tridimensional. Necesitan mucho más recursos computacionales que una malla estructurada puesto que la situación de los elementos debe ser explícitamente almacenada. Generalmente, en este tipo de mallas se usan elementos con forma de tetraedro, aunque debido a su naturaleza irregular se puede usar cualquier tipo de elemento, incluso diferentes tipos de elementos en una misma malla. Estas mallas pueden ser empleadas en el caso de dominios complejos no regulares, donde las mallas estructuradas no pueden ser utilizadas. En este trabajo de investigación se trabajará con mallas no estructuradas.

### D.5.1 Generación de la malla

La mayoría de los algoritmos usados en el mallado de dominios continuos en el método de los volúmenes finitos comienzan mallando las superficies que limitan dicho dominio, para posteriormente rellenar el interior con elementos volumétricos. Estos algoritmos son los usados en el presente trabajo de investigación. En concreto el denominado en la bibliografía anglosajona "Advancing Front" [George96]. Para la aplicación de este algoritmo, es muy importante la generación de mallas superficiales de gran calidad, debido a que este factor repercutirá notablemente en la calidad final de la malla tridimensional. La triangulación de Delaunay [George98] se usa habitualmente con este fin, ya que maximiza el ángulo mínimo de todos los ángulos de los triángulos generados. Así, se evitan triángulos degenerados y se aumenta la calidad de la malla superficial. Una vez se

dispone de una malla superficial adecuada, comienza un proceso iterativo. Primero, se crea el llamado "*frente*" ("*front*" en la bibliografía anglosajona) con los vértices de los triángulos de la superficie exterior. A partir de ellos, se generan los primeros elementos volumétricos con unas dimensiones dadas. Posteriormente, se evalúa la posición de los nodos que limitan el volumen de los elementos creados. Si la región continua aún no ha sido completamente mallada, se crea un nuevo "*frente*" con los nodos más recientes y se itera de nuevo. Éste proceso finalizará cuando todo el dominio haya sido mallado.

## D.6 Condiciones de contorno

Como en todos los problemas basados en la resolución de un sistema de ecuaciones diferenciales, en la resolución de las ecuaciones de Navier-Stokes mediante el método de los volúmenes finitos es necesario especificar unas condiciones de contorno para poder determinar una solución válida y única. La particularidad de este método es que las condiciones de contorno se aplican en las superficies que limitan el modelo tridimensional [Versteeg95].

En un problema concreto, las condiciones de contorno deben darse en el número justo para determinarlo. Si se excede el número de condiciones de contorno, se puede llegar a la obtención de resultados sin sentido físico. Si por el contrario no se dan las condiciones de contorno suficientes para determinar el problema, la solución puede no converger.

Existen seis tipos de condiciones de contorno principales: entrada ("*Inlet*" en la bibliografía anglosajona), salida ("*Outlet*" en la bibliografía anglosajona), abierto ("*Opening*" en la bibliografía anglosajona), muro ("*Wall*" en la bibliografía anglosajona), simetría ("*Symmetry plane*" en la bibliografía anglosajona) y plano periódico [Versteeg95].

Las condiciones de contorno más robustas en la aplicación del método de los volúmenes finitos suelen ser las que determinan una velocidad del fluido en la entrada y una presión en la salida.

### D.6.1 Entrada

En la superficie donde se aplica esta condición de contorno se limita la dirección del fluido hacia el interior del dominio. Ha de incluirse el valor de la velocidad, ya sea en coordenadas cartesianas o cilíndricas, o bien el valor de presión relativa o total.

### **D.6.2 Salida**

En la superficie donde se aplica esta condición de contorno se limita la dirección del fluido hacia el exterior del dominio. Ha de incluirse el valor de la velocidad, ya sea en coordenadas cartesianas o cilíndricas, o bien el valor de presión relativa o total.

### **D.6.3 Abierto**

Una condición de contorno abierta permite que el fluido circule tanto hacia el interior como hacia el exterior del dominio. Es posible también, que exista una mezcla de los dos casos anteriores. Al igual que la condición de contorno de entrada y salida, es necesario especificar bien la velocidad del fluido o bien la presión relativa o total en la superficie.

### **D.6.4 Muro**

Cuando se especifica la condición de contorno de muro, existen diferentes opciones de implementación:

1. Sin deslizamiento ("No slip" en la bibliografía anglosajona). En este caso todas las componentes de la velocidad del fluido pasan a ser cero en esta superficie. Sirve para modelar fronteras reales con efectos viscosos.
2. Con deslizamiento ("Free slip" en la bibliografía anglosajona). En este caso sólo la componente normal a la dirección de la superficie pasa a ser cero. Además el valor de la tensión de arrastre en la superficie también vale cero. Sirve para modelar fronteras ideales en las que no se tiene en cuenta la viscosidad.
3. Móvil sin deslizamiento. En este caso, la superficie donde se aplica esta condición de contorno es móvil. El fluido en la superficie se mueve a la misma velocidad que la superficie.

### **D.6.5 Plano de simetría**

La condición de contorno de plano de simetría actúa como un espejo para la distribución de flujo. Para ello, la velocidad normal al plano de simetría se anula. Además se anulan los gradientes de las variables escalares normales a la superficie.

## D.6.6 Plano periódico

En muchas situaciones prácticas, una porción del modelo se repite en muchas regiones idénticas. Estos problemas se dice que tienen periodicidad rotacional o traslacional. A pesar de que se puede modelar el problema completo, es más eficiente modelar simplemente una zona y posteriormente aplicar periodicidad. La condición de contorno periódica se aplica siempre a dos superficies y permite que el flujo que sale por una de ellas entre posteriormente por la otra.

## D.7 Solución del sistema de ecuaciones algebraico

### D.7.1 Construcción del sistema global de ecuaciones

Una vez mallado el dominio continuo y aplicadas las condiciones de contorno, se generan un conjunto de ecuaciones lineales que derivan de aplicar el método de los volúmenes finitos a todos los elementos de la malla. Éste sistema de ecuaciones se puede escribir de la forma:

$$\sum_{nb_i} a_i^{nb} \phi_i^{nb} = b_i \quad (D.29)$$

Donde  $\Phi$  es la solución,  $b$  es el término independiente de la ecuación,  $a$  son los coeficientes de la ecuación, el subíndice  $i$  identifica el número del volumen finito o nodo en cuestión, y  $nb$  indica que el sumatorio debe realizarse para todos los nodos vecinos. La aplicación de esta ecuación al conjunto de todos los nodos de la malla constituye el sistema de ecuaciones lineales completo que debe resolverse para obtener una solución válida en todo el dominio. En el caso de una ecuación escalar (por ejemplo temperatura), los coeficientes  $a_i^{nb}$ ,  $\Phi_i^{nb}$  y  $b_i$  son simplemente números. En el caso en el que se deseen resolver las ecuaciones tridimensionales de Navier-Stokes, estos coeficientes se expresan como se muestra en las ecuaciones (D.30) y (D.31).

$$a_i^{nb} = \begin{bmatrix} a_{uu} & a_{uv} & a_{uw} & a_{up} \\ a_{vu} & a_{vv} & a_{vw} & a_{vp} \\ a_{wu} & a_{wv} & a_{ww} & a_{wp} \\ a_{pu} & a_{pv} & a_{pw} & a_{pp} \end{bmatrix}_i^{nb} \quad (B.30)$$



$$\phi_i^{nb} = \begin{bmatrix} u \\ v \\ w \\ p \end{bmatrix}_i^{nb} ; b_i = \begin{bmatrix} b_u \\ b_v \\ b_w \\ b_p \end{bmatrix} \quad (\text{B.31})$$

donde  $u$ ,  $v$  y  $w$  representan las componentes cartesianas del vector velocidad y  $p$  representa la presión. Este método de construir el sistema de ecuaciones global a resolver se denomina *tratamiento acoplado*. El objetivo es resolver las ecuaciones hidrodinámicas como un sistema único. A diferencia del llamado *tratamiento segregado*, en el que se pretende resolver secuencialmente las ecuaciones de momento, masa y energía para posteriormente aplicar correcciones, esta aproximación implica una discretización completa de las ecuaciones de Navier-Stokes para cada paso temporal y una resolución simultánea de éstas. El *tratamiento acoplado* es más robusto, eficiente y simple. Su principal inconveniente es la gran capacidad de almacenaje que necesita para trabajar con todos los coeficientes simultáneamente.

### D.7.2 Solución del sistema global ecuaciones

Una vez planteado el sistema de ecuaciones global, se resuelve algebraicamente mediante un método iterativo. En un primer paso, el sistema de ecuaciones discreto de Navier-Stokes se linealiza, quedando como resultado la expresión que se muestra en la ecuación (B.32).

$$[A][\phi] = [b] \quad (\text{B.32})$$

donde  $[A]$  es la matriz de coeficientes,  $[\Phi]$  es el vector de soluciones y  $[b]$  es el vector de términos independientes. La ecuación (B.32) puede ser resuelta iterativamente si se supone una solución aproximada inicial  $\Phi^n$ , que se corrige por un factor  $\Phi'$ , dando lugar a una solución mejor  $\Phi^{n+1}$ . Este proceso se puede ver en la ecuación (B.33).

$$\phi^{n+1} = \phi^n + \phi' \quad (\text{B.33})$$

donde  $\phi'$  se calcula a partir de la ecuación (B.34).

$$A\phi' = r^n \quad (\text{B.34})$$

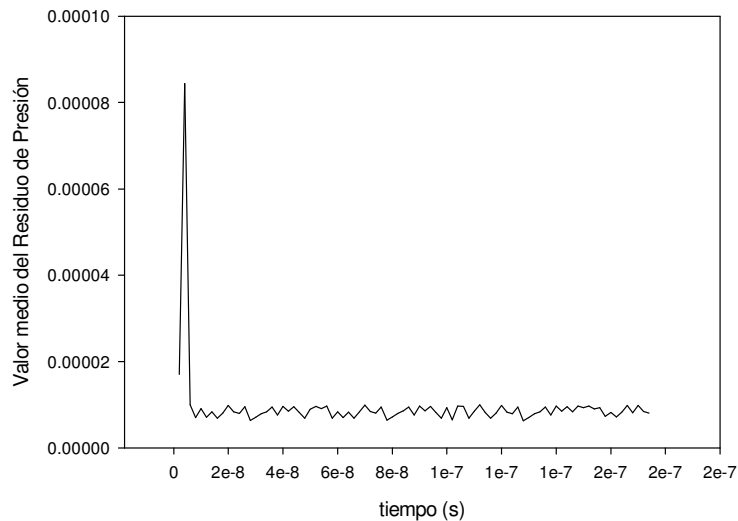
donde  $r^n$  se denomina *residuo*, y se obtiene a partir de la ecuación (B.35).

$$r^n = b - A\phi^n \quad (\text{B.35})$$

La aplicación repetida de este algoritmo proporcionará una solución de la precisión deseada

## D.8 Convergencia

La resolución de las ecuaciones de Navier-Stokes mediante el método de los volúmenes finitos es un proceso iterativo. Para poder obtener soluciones es necesario que este proceso converja. Por lo tanto, la evaluación del proceso de convergencia se hace vital en el desarrollo de la simulación. El residuo es la medida de la variación de una magnitud de una iteración a la siguiente. Para considerar que la solución ha convergido, es necesario que el valor de este residuo este por debajo de un umbral previamente fijado. Este umbral varía normalmente entre  $10^{-4}$  y  $10^{-7}$ , que se considera el límite válido para el residuo en procesadores de 32 bits. El error de redondeo del procesador enmascararía la variación del residuo si se tomase un valor menor de  $10^{-7}$ . En la siguiente figura, se puede observar la evolución del residuo durante una simulación transitoria realizada en este trabajo de investigación.



**Figura D.4.** Evolución temporal del residuo en una simulación por el método de los volúmenes finitos realizada en este trabajo de investigación

## Apéndice E. Modelado por medio del Método de los Elementos Finitos de un sensor LFE

### E.1 Introducción

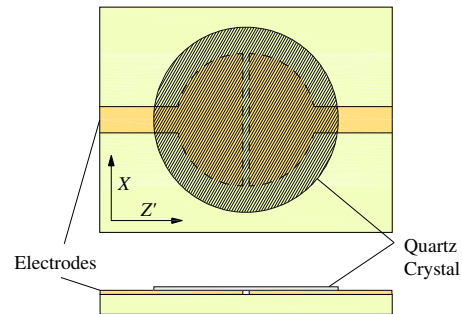
Mientras que en los cristales resonadores de cuarzo (QCR) en corte AT típicos el campo eléctrico se aplica paralelamente a la dirección del espesor (Thickness Field Excitation, TFE), ciertos autores han investigado las posibles aplicaciones de lo que se conoce como Lateral Field Excitation (LFE). Es decir, la excitación del cristal resonador mediante un campo perpendicular a la dirección del espesor. Aplicar este tipo de excitación implicaba que los electrodos estuviesen situados sobre las caras laterales paralelas al espesor del cristal. Debido a que el espesor del cristal tiene una dimensión típica de micras (166  $\mu\text{m}$  en el caso de un cristal de 10 MHz), lo que hace casi imposible la deposición de los electrodos sobre dichas superficies, se trabaja con una configuración alternativa en la que un par de electrodos se depositan sobre cada una de las caras. Estos electrodos están unidos entre sí dos a dos a través de los laterales del cristal.

Esta configuración fue aplicada por primera vez en los años 40 en cristales de cuarzo planos para medir constantes elásticas de materiales [Atanasoff41]. Otras aplicaciones se centran en osciladores y tecnología de filtros [Bechmann65, Hatch83, Ballato85, Ballato86]. Ningún uso como sensor ha sido publicado en el pasado.

Basándose en el trabajo de Vig y Ballato [Vig01, Vig98], Vetelino *et al* introdujeron y estudiaron una nueva configuración de un sensor LFE. En ella, los dos electrodos se encuentran sobre la misma cara del cristal separados por una pequeña distancia dejando la otra cara del cristal sin deposición alguna (cara sensible) como se puede ver en la Figura E.1 [Hu03].

Vig y Ballato demostraron que esos dispositivos son más sensibles a los cambios en las propiedades eléctricas (conductividad, permitividad relativa) y mecánicas (viscosidad) en líquidos que los dispositivos QCR estándar. También se han obtenido resultados muy interesantes con soluciones electrolíticas en experimentos realizados por un grupo de investigación alemán con el que habitualmente colaboramos [Hempel07-1, Hempel07-2]. En estos experimentos, se ha demostrado que es posible obtener una respuesta relevante del sensor en ausencia de líquido en su superficie. En efecto, alejando o acercando un electrodo conectado a tierra a la superficie sensible del sensor, sin necesidad de tocarlo, se han podido

observar cambios en la frecuencia de resonancia medida [Hempel06, Hempel07-3].

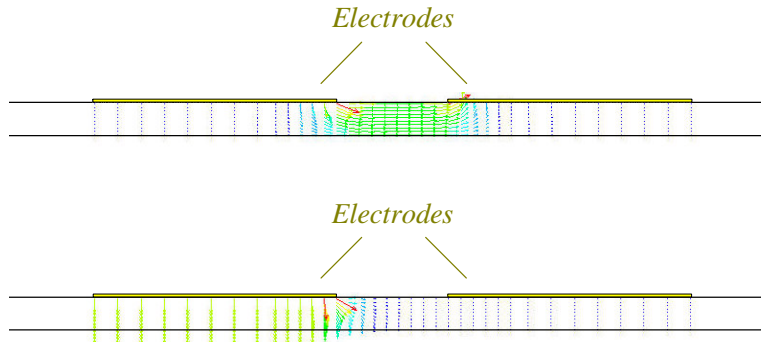


**Figura E.1.** Esquema de un dispositivo LFE

La alta sensibilidad del dispositivo se atribuye a un efecto acústico-eléctrico. Como la relación de aspecto entre la distancia que separa los electrodos y el espesor del cristal es pequeña (normalmente entre 3 y 6) el campo eléctrico con el que se excita el dispositivo no está completamente confinado en el cristal de cuarzo. Este campo también penetra en el medio adyacente a la superficie siendo influido por sus propiedades eléctricas. Este medio se puede entender como un electrodo virtual oponiéndose a los electrodos del sensor LFE. En la Figura E. 2, se puede observar la redistribución del campo eléctrico en presencia o ausencia de un electrodo virtual opuesto a los electrodos del sensor LFE.

Debido a la naturaleza piezoeléctrica del sensor, los cambios en el campo eléctrico afectan a la frecuencia de resonancia mecánica medida. La dificultad de comprender cómo el cambio en la distribución del campo eléctrico se refleja en las propiedades acústicas que finalmente gobiernan las frecuencias de resonancia de los respectivos modos de vibración del sensor, hizo que el grupo de investigación de la Universidad de Magdeburg se plantease la posibilidad de realizar un modelo numérico del dispositivo. El objetivo de este modelo era el de mejorar el entendimiento del mecanismo de transducción del sensor LFE.

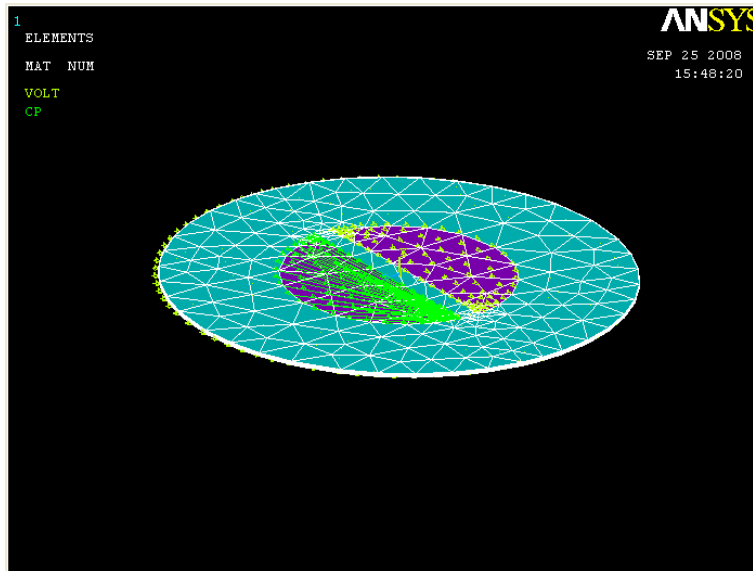
Puesto que en el trabajo previo del autor de esta tesis ya se había modelado con éxito el cristal resonante de cuarzo típico (QCR), se planteó la posibilidad de utilizar los mismos métodos para modelar el comportamiento del sensor LFE. Este modelo numérico junto con otro realizado en Estados Unidos por Errol P. EerNisse y Derek Puccio y las medidas experimentales realizadas en Alemania por Ulrike Hempel, Ralf Lucklum y Peter Hauptmann tratan de aclarar el mecanismo de transducción del sensor LFE.



**Figura E.2.** Esquema de la distribución de campo eléctrico de un sensor LFE en ausencia de un electrodo virtual puesto a tierra en la cara sensible del sensor (arriba) o en presencia de dicho electrodo (abajo).

## E.2 Resultados experimentales y simulaciones

El cristal resonador de cuarzo modelado tiene una frecuencia de resonancia de 10 MHz y unos electodos semicirculares de 10 mm de diámetro con una distancia entre ellos de 0.5 mm. El modelo mallado se puede ver en la Figura E.3.



**Figura E.3.** Modelo mallado del sensor LFE con condiciones de contorno

El procedimiento seguido para realizar el modelo fue muy similar al del capítulo 6. El tipo de elemento escogido fue igualmente el SOLID 98. Se realizó un mallado irregular de la superficie del sensor y los elementos fueron extruídos en la dirección del espesor en número suficiente (16 elementos) para obtener una buena resolución de los modos fundamentales de cizalla. Las propiedades físicas de los materiales, en nuestro caso cuarzo y oro, son las mismas que en el capítulo 6 (ver tabla 6.1). Para modelar el efecto de los electrodos, se usó el mismo procedimiento que en capítulo 6; es decir, prescindiendo de representarlos geoméricamente y considerando un incremento efectivo de la densidad del cuarzo en la región donde se encontraban. Se realizaron una batería de simulaciones armónicas en un rango de frecuencias entre 9.9 MHz-10.1 MHz, tomando 150 puntos de cálculo en el rango.

Las condiciones de contorno se escogieron de tal manera que emulasen las situaciones experimentadas en el laboratorio. Se generaron dos conjuntos de nodos con el grado de libertad tensión acoplado. Dichos conjuntos estaban formados por los nodos situados en la superficie del modelo y que se correspondían con la posición de los dos electrodos. Uno de los conjuntos se colocó a 0 voltios, mientras que el otro recibió una excitación sinusoidal de 0.5 V de pico. Asimismo, se creó otro conjunto con todos los nodos de la superficie libre del cristal, acoplando su grado de libertad tensión. Para cada simulación, se variaba la tensión de este conjunto, emulando así las propiedades eléctricas de los diferentes líquidos que en los experimentos se ponían en contacto con el sensor. Éstos líquidos, de diferentes permitividades, fueron: ciclohexano, hexano, heptano, octano, nonato, decano y dodecano. Además, la influencia de los alcoholes se estudió midiendo octanol, hexanol e isopropanol. Las propiedades de estos líquidos pueden observarse en la Tabla E. 1.

El primer conjunto de experimentos y simulaciones consideró el dispositivo LFE en aire. El espectro de conductancias medido en laboratorio se puede observar en la Figura E. 4.

En esta figura se pueden observar las tres primeras resonancias características, aunque el espectro contiene muchas más resonancias a frecuencias más elevadas.

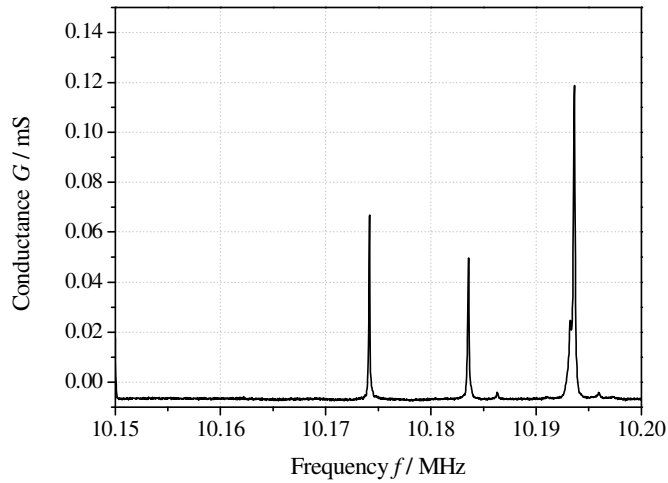
Los tres picos están separados aproximadamente 10 kHz y tienen una intensidad muy parecida. El espectro de conductancias obtenido en la simulación con ANSYS se puede observar en la Figura E. 5.

El modelo calcula varios picos de resonancia. Las primeras tres resonancias están separadas aproximadamente 12 kHz y 11 kHz. Las frecuencias absolutas difieren en la simulación de las medidas experimentales. Éste hecho se debe a que el modelo numérico del cristal de cuarzo no refleja exactamente el espesor del resonador usado para los

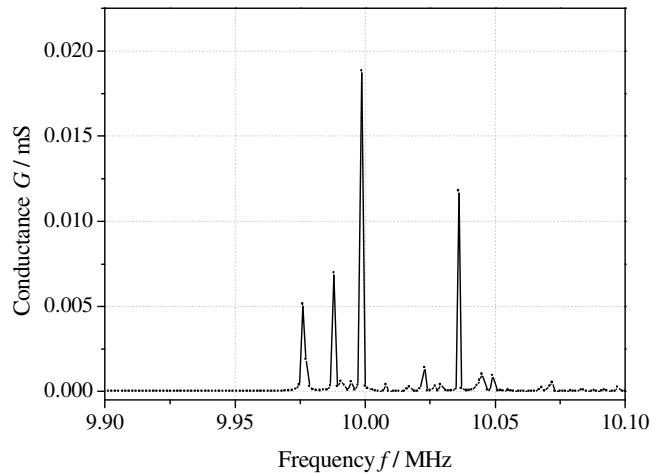
experimentos. Simulaciones similares realizadas por Errol P. EerNisse y Derek Puccio mediante la herramienta de simulación COMSOL confirman los resultados como se puede observar en la Figura E. 6.

**Tabla E. 1.** Densidad, viscosidad y permitividad relativa (25°, \*20°)[ Lide03]

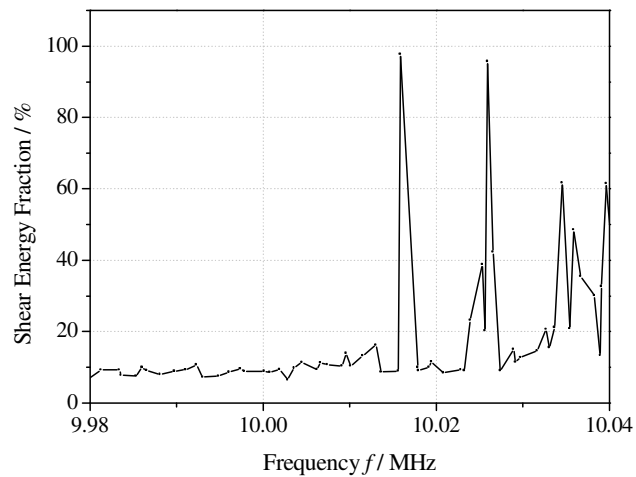
Sustancia	Densidad $\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	Viscosidad $\eta$ (mPas)	Permitividad relativa $\epsilon$
Hexano (C <sub>6</sub> H <sub>14</sub> )	0.6606	0.3	1.8865
Heptano (C <sub>7</sub> H <sub>16</sub> )	0.6795	0.387	1.9209
Octano (C <sub>8</sub> H <sub>18</sub> )	0.6986	0.508	1.948
Nonato (C <sub>9</sub> H <sub>20</sub> )	0.7192*	0.665	1.9722
Decano (C <sub>10</sub> H <sub>22</sub> )	0.7266	0.838	1.9853
Dodecano (C <sub>12</sub> H <sub>26</sub> )	0.7495*	1.383	2.012
Cyclohexano (C <sub>6</sub> H <sub>12</sub> )	0.7739	0.894	2.0243
Octanol (C <sub>8</sub> H <sub>18</sub> O)	0.8262	7.288	10.3
Hexanol (C <sub>6</sub> H <sub>14</sub> O)	0.8136*	4.578	13.03
Isopropanol (C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> O)	0.7809	2.038	20.18



**Figura E.4.** Espectro de conductancias medidas experimentalmente en aire



**Figura E.5.** Espectro de conductancias calculado con ANSYS



**Figura E.6.** Fracción de la energía de cizalla en función de la frecuencia calculada con COMSOL. Equivalente al espectro de conductancias

Tras estas primeras comprobaciones, se concluyó que los modelos numéricos representaban importantes características del sensor LFE usado en las investigaciones experimentales. Se aplicaron ambas simulaciones, para obtener parámetros complejos del sensor difíciles de medir en el laboratorio, principalmente las distribuciones del campo eléctrico y los desplazamientos mecánicos en la superficie del dispositivo. En la



Figura E. 7 se puede observar los desplazamientos de cizalla en la dirección X de las tres primeras resonancias calculadas con ANSYS.

En la Figura E. 7 se observa que los desplazamientos en la primera resonancia están fuertemente confinados en el centro del disco de cuarzo donde todos los puntos se mueven en fase. Denominaremos a este modo, que es el fundamental del sensor, el C100, debido a que es un modo de cizalla (C), posee un nodo en la dirección del espesor (Y), cero nodos en la dirección X y en la dirección Z. En cambio, los desplazamientos en X en la segunda resonancia se caracterizan por un patrón de desplazamiento de cuatro cuadrantes. Las oscilaciones de los cuatro cuadrantes están desfasadas dos a dos, observándose un nodo sin oscilación en el centro del dispositivo. Denominaremos a este modo el C111, debido a que es un modo de cizalla (C), posee un nodo en la dirección del espesor (Y), un nodo en la dirección X y un nodo en la dirección Z. Por último, la tercera de las resonancias se caracteriza por un patrón mucho más complejo de desplazamiento que se mantiene paralelo a la dirección de simetría del sensor.

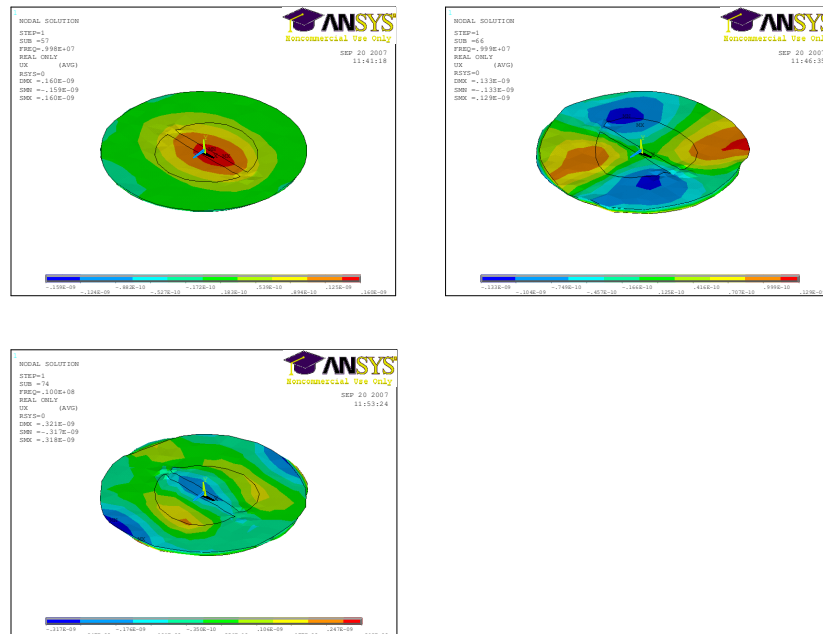
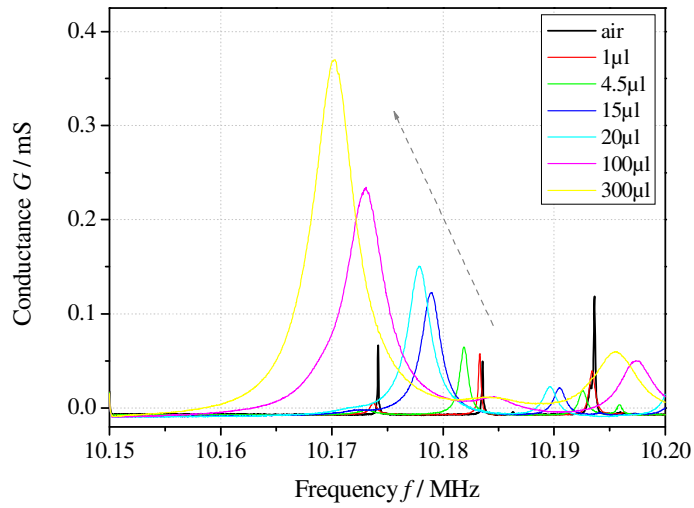


Figura E.7. Desplazamientos mecánicos en la dirección X de los tres primeros modos de vibración del sensor LFE calculados con ANSYS

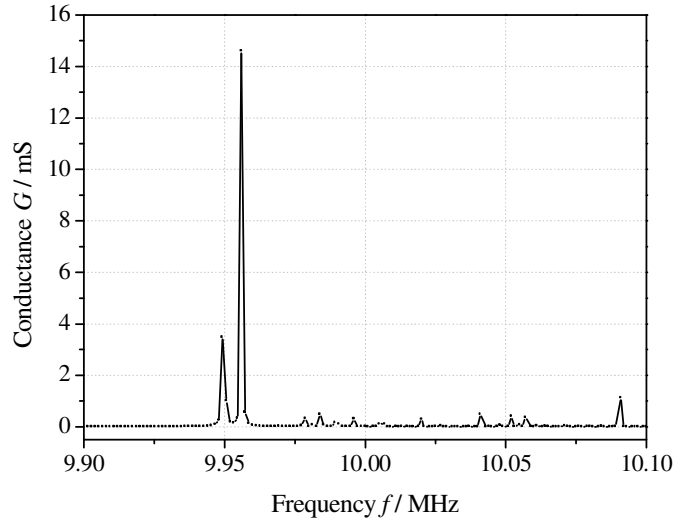
El segundo conjunto de experimentos y simulaciones considera un sensor LFE en contacto con un medio de una permitividad mayor que el cuarzo ( $\epsilon_q$  aproximadamente 4). En los experimentos iniciales se expuso el resonador a agua ( $\epsilon_a=81$ ), comenzando con una simple gota ( $1\ \mu\text{l}$ ) depositada en el centro del cristal de cuarzo. El volumen de la gota se incrementó gradualmente de manera que el líquido cubriera un área cada vez mayor del cristal. Finalmente, un volumen de  $300\ \mu\text{l}$  fue aplicado para cubrir la superficie entera. El incremento gradual del volumen de líquido aplicado proporciona pistas sobre el proceso de redistribución del campo eléctrico y sobre el comportamiento de los modos resonantes.

En la Figura E.8 se pueden observar los resultados del experimento en el espectro de conductancias. Una pequeña cantidad de líquido provoca un descenso de las frecuencias de resonancia de los modos debido a la masa añadida a la superficie del sensor, así como un descenso de la magnitud del primer y tercer modo. El segundo modo permanece estable. Cuando la cantidad de líquido aumenta y se cubre el área de los dos electrodos (aproximadamente con  $20\ \mu\text{l}$ ), la amplitud del segundo modo crece significativamente y se convierte en el de mayor amplitud. Este proceso continúa hasta que la superficie entera del cristal de cuarzo se cubre ( $300\ \mu\text{l}$ ). El descenso total en la frecuencia de la segunda resonancia es aproximadamente de  $-13\ \text{kHz}$ . Se hace notar que ninguna de las resonancias en la Figura E. 8 exhibe un comportamiento similar en términos de variación de frecuencia a las de un sensor TFE convencional. En este caso, el modelo de Kanazawa y Gordon [Kanazawa85-1, Kanazawa85-2], predice una variación de frecuencia de  $-2\ \text{kHz}$ . Debido a que el cristal de cuarzo que se usó en las medidas experimentales tenía una superficie muy suave, el efecto rugoso se puede excluir como una explicación para la gran desviación de más de  $10\ \text{kHz}$  entre la variación de frecuencia medida y la predicha por la ecuación de Kanazawa.

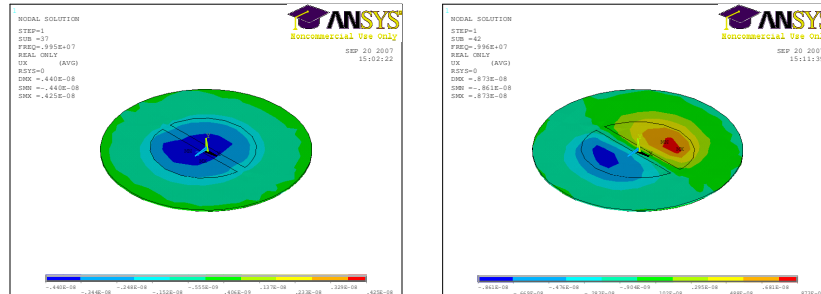
En la simulaciones, las propiedades eléctricas del medio líquido que se puso en contacto con el sensor se consideraron cambiando las condiciones de contorno y colocando la superficie libre del modelo del sensor a un potencial de  $0\ \text{V}$ . Si bien el hecho de poner a tierra la superficie del dispositivo no representa exactamente la distribución real de campo eléctrico en un medio de alta permitividad, ni su carga acústica debida a su densidad y viscosidad, pareció una elección razonable como primera aproximación. El espectro de conductancias calculado y los correspondientes desplazamientos en el eje X se han representado en la Figura E.9 y en la Figura E.10 respectivamente.



**Figura E.8.** Espectro conductancias experimentales en función de la cantidad de líquido depositada sobre la cara sensible del sensor LFE



**Figura E.9.** Espectro de conductancias del sensor LFE con la cara sensible calculado con ANSYS. No incluye efecto de masa en los electrodos



**Figura E.10.** Desplazamientos mecánicos en la dirección X de la primera (figura izquierda) y la segunda (figura derecha) resonancias calculadas con ANSYS. La cara sensible del sensor se ha colocado a 0 V

En el espectro de conductancias, se pueden observar dos resonancias principales muy próximas, donde el segundo pico de resonancia es significativamente más grande que el primero. Si se presta atención en el desplazamiento en X de ambas resonancias, puede observarse que la primera se corresponde con el primer modo de la simulación del sensor en vacío (ver Figura E. 10 izquierda). Se puede observar el mismo patrón de desplazamiento concentrado en el centro del cristal con todas las partículas moviéndose en fase. La diferencia de frecuencias entre el caso del sensor en vacío y el sensor con su superficie libre a 0 V es aproximadamente de -27 kHz.

En cuanto a la segunda resonancia, el modo que se observa es totalmente diferente a los modos de la simulación previa con el sensor en vacío (ver Figura E. 10 derecha). El desplazamiento está confinado al área de los electrodos y se caracteriza por un desfase en el desplazamiento entre ellos (modo anti-paralelo). Denominaremos a este modo el C101, debido a que es un modo de cizalla (C), posee un nodo en la dirección del espesor (Y), cero nodos en la dirección X y un nodo en la dirección Z. La variación de frecuencia de este modo entre el caso del sensor en vacío y del sensor con su superficie libre puesta a 0 V, no es aplicable puesto que el modo C101 no se excita cuando el sensor está en vacío.

En contraste con los datos obtenidos en la simulación, sólo una resonancia es visible en las medidas experimentales. La disipación de energía acústica incrementa el ancho de banda del modo dominante que se superpone al de menor amplitud (ver Figura E. 8, volúmenes de 15  $\mu\text{l}$  y 20  $\mu\text{l}$ ). Las simulaciones no tienen en cuenta este efecto de la energía acústica disipada debido al amortiguamiento viscoso. Por este motivo, los resultados de las simulaciones contienen picos muy pronunciados con un gran factor de calidad. El estudio de estos cambios en las condiciones de

contorno mecánicas de la interfase cuarzo-medio queda fuera del objetivo de este trabajo. Simulaciones similares realizadas en COMSOL verifican los resultados obtenidos en ANSYS [Hempel08].

### E.3 Conclusiones

De ambas simulaciones se extrae la conclusión de que el modo C101, que no se excita en condiciones de vacío, aparece cuando el sensor es cargado con un medio líquido que modifica el potencial de la superficie libre del sensor. Cuando esto sucede, las condiciones de contorno son diferentes y el modo C101 pasa a ser el que gobierna la respuesta del dispositivo. Las variaciones de frecuencias registradas por el dispositivo LFE son distintas de las predichas por Kanazawa para los cristales resonadores de cuarzo en contacto con medios líquidos debido a que en un dispositivo TFE el modo fundamental siempre es el C100, mientras que en un dispositivo LFE se produce un cambio de modo dominante cuando el sensor es cargado. Este nuevo modo dominante, se muestra además muy sensible a las propiedades eléctricas de los medios colindantes.

El origen de la extraordinaria respuesta del sensor es la alteración de las propiedades eléctricas de éste cuando se varían las condiciones de contorno en su cara libre (sensible). Sin embargo, esta modificación no causa directamente la disminución de la frecuencia de resonancia tan acusada. Los cambios en las propiedades eléctricas resultan efectivos debido a cambios en las propiedades acústicas del cristal. En el caso del sensor en vacío, el campo eléctrico que lo excita tiene una componente principal lateral, mientras que la componente vertical es débil. Debido a las propiedades piezoeléctricas del cuarzo, se genera un movimiento de cizalla entre las dos superficies principales del cristal. Las condiciones de resonancia están definidas por la velocidad del sonido en la dirección normal y el espesor del cristal. Este movimiento de cizalla produce a su vez un desplazamiento eléctrico en la superficie sensible y, en consecuencia, se genera un campo eléctrico en la dirección del espesor. Este campo causa una rigidización piezoeléctrica y en consecuencia un incremento de la velocidad de propagación de la onda acústica. La rigidización piezoeléctrica es mayor en vacío porque el desplazamiento de carga no está limitado por una condición de contorno eléctrica externa. Por tanto, los correspondientes modos resonantes tienen una frecuencia elevada. Por el contrario, si la superficie sensible tiene una condición de contorno de 0 V, el campo eléctrico en la dirección del espesor crece. Sin embargo, el potencial eléctrico y el campo eléctrico asociado están

limitados en ambas superficies, de manera similar a lo que ocurre en un resonador convencional TFE en el modo de resonancia serie. De esta manera, el efecto de rigidez piezoeléctrica se reduce para satisfacer las condiciones de contorno en la superficie. La velocidad del sonido decrece, y por tanto, las frecuencias de resonancia son significativamente menores.

En este apéndice, se ha contribuido al estudio y a la mejor comprensión de los mecanismos físicos que subyacen en el proceso de transducción de un sensor LFE. Este trabajo ha formado parte de la publicación: '*Quartz crystal resonator sensors under lateral field excitation – A theoretical and experimental analysis*', *Measurement Science and Technology* 19. (2008)