

[研究·设计]

DOI:10.3969/j.issn.1005-2895.2015.02.001

基于毛细不稳定性的聚焦通道微液滴操控研究

刘丹丹¹, 徐玉梅¹, 杨 健¹, 马志军², 丁显廷³

(1. 浙江大学 化工机械研究所, 浙江 杭州 310027;
2. 华南理工大学 材料科学与工程学院, 广东 广州 510640;
3. 上海交通大学 生物医学工程学院, 上海 200240)

摘 要:针对目前利用微流道产生微液滴时,存在的制作成本高、难于控制液滴大小的缺点,采用数值模拟的方法对聚焦通道进行研究。文章基于毛细不稳定性来系统研究聚焦流道液滴生成与作用规律。研究中主要采用水平集方法,探讨了连续相速度、表面张力、两相黏度比、通道尺寸等因素对于液滴生成的影响,并从不稳定性角度来阐释其物理机制。研究结果表明水平集方法可以很好地模拟液滴破碎,发现连续相速度、表面张力、两相黏度比对液滴尺寸影响较大。

关 键 词:微液滴;聚焦流道;毛细不稳定性;水平集

中图分类号:TQ021.1 文献标志码:A 文章编号:1005-2895(2015)02-0001-05

Study on Micro-Droplet Manipulation in Focusing Channel Based on Capillary Instability

LIU Dandan¹, XU Yumei¹, YANG Jian¹, MA Zhijun², DING Xianting³

(1. Institute of Process Equipment, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China;
2. School of Material Science and Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China;
3. School of Biomedical Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Abstract: There are some disadvantages in the fabrication of micro droplet in micro-channels, such as high cost and difficulty of droplet size control. The law of droplet fabrication was studied by investigating capillary instability. Level set method was adopted for study the impact on the droplet of different factors, such as continuous phase velocity, surface tension, two phase viscosity ratio and channel size. The physical mechanism was explained with the respect of capillary instability. The result shows that level set method can be adopted to simulate the droplet breakup process. Continuous phase velocity, surface tension and viscosity have great impact on the droplet size.

Key words: micro-droplet; flow focusing channel; capillary instability; level set

当今,随着精细加工的迅速发展,微纳尺度下的独特流体现象引起了广泛的关注。其中微液滴因其形态稳定、便于操控、不易交叉污染、成本低等优势得到了国内外学者越来越多的重视,其在细胞科学、药物筛选、蛋白质结晶、材料合成等各项领域研究都拥有突破性的进展^[1]。

在微纳尺度下,其特征尺寸小,使得雷诺数较小,流动呈现层流等特点,通常很难采用搅拌等外力介入的方式来产生液滴,更不具可操控性。因此目前存在

2种能有效制备微液滴的方式,都与相界面的不稳定性有着密切的关系,可以分为压力差诱导破碎和毛细不稳定性破碎。压力差诱导破碎典型结构代表为T型结构,其采取用压力驱动微通道中的水相和不同类型的油相以生成液滴。在液滴逐渐增大阻塞水平通道时,称之为挤压区。Garstecki等证实了在挤压区,跨过液滴的压力差将大大增大,迫使水相形成颈部结构并破碎成液滴。在这种情况下,液滴的形成不是由于剪切力作用,而是由压力差诱导产生^[2]。第2种为基于毛

收稿日期:2014-11-18;修回日期:2014-12-24

基金项目:国家自然科学基金(NO. 51375444)

作者简介:刘丹丹(1990),女,山东临沂人,硕士研究生,研究方向为微纳器件操控。E-mail:ldsnyfqa@126.com

细不稳定性,即毛细不稳定性液滴产生方式。典型代表为聚焦流通道。相比于 T 型通道,液滴产生过程更加稳定,可控范围更广,也更加精确。其毛细不稳定性在生成微纳液滴方面发挥了至关重要的作用。由于在绝大多数的微流控芯片内毛细数降低,界面张力的作用越来越大,由多相界面的不稳定性引发的扰动会破碎生成微液滴。

聚焦通道通常通过在方形通道上和毛细玻璃管的人工组装来实现的。这种制作过程由于校准等因素是非常耗时间的,而随着计算机技术的进展,数值模拟是非常方便而且高效的途径,能够帮助人们更好地理解与预测流道的实际性能。数值模拟可以节省人们重复设计、制作、测试的繁琐过程,做到快速而经济。

采用聚焦通道的数值模拟方法,本文通过改变 2 种流体的物性参数,改变流量等参数来探讨液滴产生的操控,并给出了液滴生成的不稳定性现象,对深入了解微液滴产生与操控机理有着重大的实际意义。

1 数值模拟

微尺度的流动与宏观流动相比有着不同的特点,但 Bocque 等在其文章中通过对已有的实验数据分析^[3],指出在大于 1 nm 的尺度下,连续介质的假设还是成立的。本文中流场与压力场的方程依旧采用 Navier-Stokes 的方程进行描述。界面的追踪采用水平集的方法。界面是由 $\Phi = 0.5$ 来表示。

$$\rho \frac{\partial u}{\partial t} + \rho(u \cdot \nabla)u = \nabla \cdot [pI + \mu(\nabla u + (\nabla u)^T)] + F_{st}, \quad (1)$$

$$\nabla \cdot u = 0, \quad (2)$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} + u \cdot \nabla \Phi = \gamma \nabla \cdot (-\Phi(1-\Phi) \frac{\nabla \Phi}{|\nabla \Phi|} + \varepsilon \nabla \Phi). \quad (3)$$

式中: ρ 代表密度/($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$), u 代表速度/($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$), t 代表时间/s, μ 代表动力黏度/($\text{Pa} \cdot \text{s}$), p 代表压力/Pa, I 为单位矩阵, F_{st} 代表表面张力/($\text{N} \cdot \text{m}^{-3}$)。此外 Φ 代表水平集, γ 和 ε 代表数值稳定参数。其中密度和动力黏度可以通过下面的公式(4)进行计算:

$$\begin{aligned} \rho &= \rho_1 + (\rho_2 - \rho_1)\Phi, \\ \mu &= \mu_1 + (\mu_2 - \mu_1)\Phi. \end{aligned} \quad (4)$$

式中: ρ_1 为第一相流体密度, ρ_2 为第二相流体密度, μ_1 为第一相流体黏度, μ_2 为第二相流体黏度。

模拟中入口分别为速度入口,出口为压力出口,壁面为湿壁面边界条件,接触角和滑移长度分别定义为 108° 和网格尺寸参数 h 。接触角是指在两相交点处所

作的液-液界面的切线穿过液体与固-液交界线之间的夹角 θ ,在宏观流动中,边界无滑移(假设给出足够精确的近似)。但在微/纳米流动中,流动特征尺度有可能接近滑移长度时,滑移问题显得十分重要。滑移长度的大小是重要的物理参数之一。滑移长度是指液体速度降至零的位置到界面的距离,本文中滑移长度设置为网格参数 h 。所用到的 2 种液体的参数如表 1 所示。

表 1 模拟中用到的材料参数

Table 1 Material properties in simulation

物质	密度/ ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)	动力黏度/ ($\text{Pa} \cdot \text{s}$)	表面张力系数/ ($\text{N} \cdot \text{m}^{-1}$)
水	1 000	0.001	0.006
油	880	0.075	

2 影响因素

2.1 表面张力

由于微纳尺度下流速很小,雷诺数较小,惯性力可以忽略,而表面张力的作用显得尤为重要。在实验中可以采用加入表面活性剂的方式来减小表面张力,研究表面张力对液滴的影响有实际的应用价值。Lee 等研究发现加入表面活性剂可以减少表面张力,进一步减少液滴破碎的能量,并使两相间的界面更加稳定^[4]。

2.2 两相入口速度

对于特定的结构来讲,最为经济快速调节液滴尺寸的手段为调节两相入口的速度。Takeuchi 等^[5]发现在微通道中液滴的尺寸是流速以及两相流速比的函数。

2.3 结构尺寸

研究表明,在极低的速度下,液滴的尺寸主要由通道的尺寸来决定的^[6]。由此可见结构尺寸对液滴的形成有着举足轻重的作用。本文主要研究的是液滴产生处的喷嘴长宽尺寸对于液滴形成的影响。

2.4 两相黏度

在微通道中黏性力的作用依旧不可以忽略。Cubaud 和 Nie 等人研究发现黏性两相的黏度对液滴直径有着决定性作用^[7-8]。本文对离散相和连续相的黏度分别进行研究,探讨其影响。

3 不稳定性分析

Tomotika 针对毛细不稳定性提出了理论模型,考虑了两相黏度的影响,本文采用 Tomotika 模型^[9],求出相应参数下增长率最大的波长,根据连续性假设,一个波长对应的流体破碎成一个液滴,将不稳定性与液滴大小联系起来,进行探讨。Tomotika 中求得的波长增长速率公式为

$$q = \frac{\sigma \Omega(k_a r)}{2\eta R} \quad (5)$$

式中: σ 为界面张力, R 为内径, η 为动力黏度, Ω 为扰动的无因次增长速率,是关于波数 k 与 R 的乘积 k_a 和黏度比 r 的函数。 Ω 的求解需借助 MATLAB 编程实现。解出 Ω 的最大增长率所对应的值为 x ,可求得波长为

$$\lambda = \frac{2\pi}{x} \cdot R_0 \quad (6)$$

其中 R_0 为射流的直径。

根据连续性假设,一个波长对应的流体破碎成一个液滴,则波长与液滴直径的关系式为

$$\lambda = \frac{\pi D^2}{4D_0} \quad (7)$$

式中: D 为液滴直径, D_0 为射流的直径。

(6)、(7)式联立可以求得射流直径与液滴直径的关系,关系如下

$$D = \sqrt{4/x} D_0 \quad (8)$$

以微尺度下的单圆柱液滴破碎过程为例,采用 Tomotika 模型得到理论解,求得不稳定性对应的波长为 $27.318\ 196\ 99\ \mu\text{m}$ 。在 level-set 方法模拟求得液滴直径转化为波长的值是 $25\ \mu\text{m}$,误差为 8.5% 。结果证实文章的模型和后处理方法是和实际吻合的。

4 结果与讨论

在聚焦微流通道中,液滴的形成由 3 个阶段组成,如图 1 所示。第 1 阶段如图 1(a) 所示,两相分别从 3 个入口进入,其中连续相为相对的 2 个入口,2 种流体在通道交汇处相聚;第 2 阶段由于压力场的作用,2 股流体被迫向下游缩口流动,如图 1(b),在表面张力和黏性力的共同作用下,离散相受到连续相的挤压,形成一条连续的窄流;第 3 阶段由于毛细不稳定性的作用以及两相间的相互作用,离散相的夹流无法保持稳定,最终破碎成均匀的小液滴,见图 1(c) 和图 1(d)。其发展情况,可由模拟云图 1 给予定性的说明。

图 2 所示为连续相速度与液滴直径的关系示意图,可以看到连续相速度与液滴直径近乎成线性关系。连续相速度增大,会使离散相夹流半径减小,根据毛细不稳定性公式(8),半径越小,波长越小,可以解释液滴直径变小的现象。连续相速度减少一倍时,液滴直径增加了 40.4% ,这是非常可观的,所以通过调节连续相速度来调节液滴直径是非常经济而快速的方式。

在保持其他参数不变的情况下,对不同的表面张力进行了模拟,其中液滴直径大小的数据是通过模拟

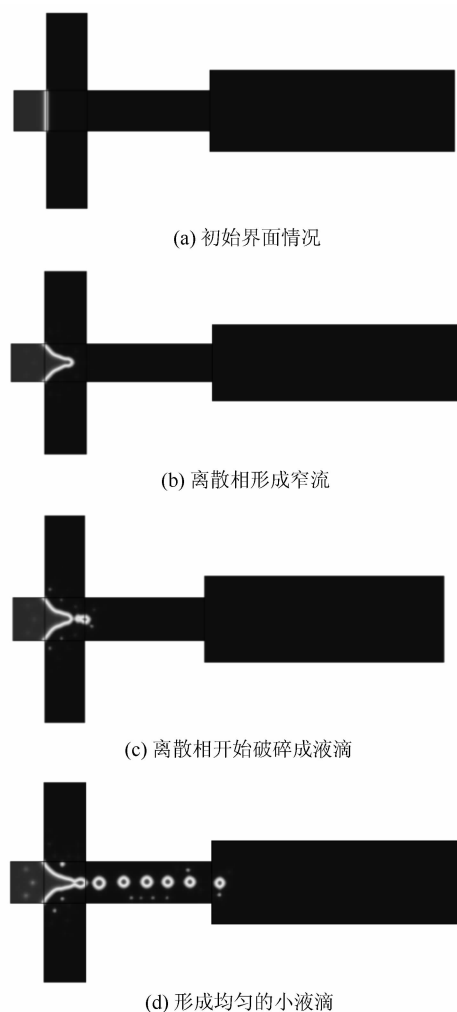


图 1 液滴生成发展情况示意图

Figure 1 Schematic diagram of droplet development

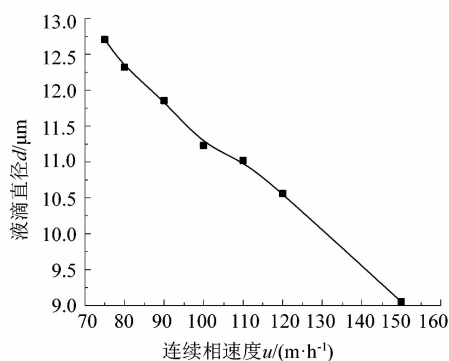


图 2 连续相速度对液滴直径影响关系图

Figure 2 Impact of continuous phase velocity on droplet diameter diagram

中对液滴面积进行积分,通过面积来进一步求得各个液滴的直径,研究发现液滴直径相差不大,此处的液滴直径为取多个液滴直径的平均值而求得。后续模拟结果都如上处理所得。图 3 为不同表面张力系数与其对

应的液滴直径的关系。从图3可知,随着表面张力的增加,液滴直径随之增加,这是与毛细中表面张力的作用是吻合的,表面张力保持液流的完整性,其作用越大,液滴形成所需要的剪切力越大,而形成所需时间越长,导致液滴直径越大。表面张力从0 N/mm到6 N/mm,液滴直径增加了21.5%,可见表面张力对液滴的生成有不可忽视的作用。从图中可以看出当表面张力到一定数值,直径的增加趋于平缓,表面张力从5 N/mm增长到6 N/mm时,液滴直径仅增加了0.37%。在制造液滴时,表面张力呈现的这种趋势可以借鉴,适当增加表面活性剂,避免资源的浪费。

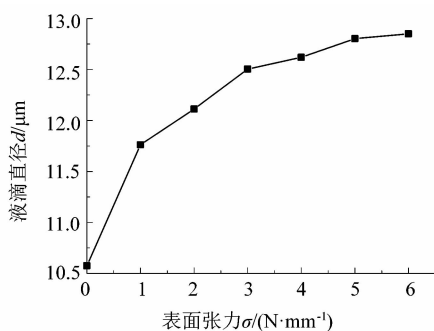
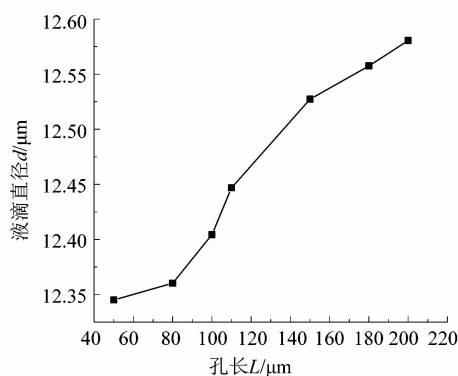


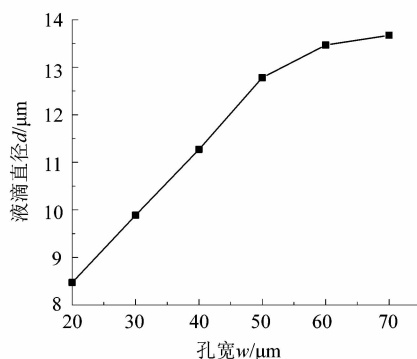
图3 表面张力对液滴直径影响关系图
Figure 3 Impact of surface tension on droplet diameter diagram

图4描述的是随着缩口尺寸的变化对液滴直径的影响,图4(a)为孔长影响,图4(b)为孔宽影响。显而易见,随着缩口长度的增大,液滴直径也是增大的,其变化趋势并不是线性的,且增长趋势也不明显,缩口长度从50 μm 增加到200 μm ,液滴直径仅增加了1.9%。若采用改变缩口长度的方法来改变直径,是非常不经济的。但由图4(b)可以看到随着孔宽的增大,液滴直径也增大。孔宽增大,两液体交汇处压力减小,导致颈缩半径增加,而使不稳定性波长增加,相应地液滴尺寸就会增加。液滴直径也在增加,当缩孔宽度从30 μm 增加到70 μm ,液滴直径增加了38.3%,由此看出相对于孔长影响,孔宽影响较大。

图5所示为两相黏度对于液滴直径的影响,如图5(a)所示离散相黏度增加,液滴直径增加;连续相黏度增加,液滴直径减小。这种趋势与Tomotika模型是一致的,在Tomotika模型中,当黏度比小于 $10^{-0.533} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 即0.2931 $\text{Pa} \cdot \text{s}$ 时,随着黏度比的减小,波长是增大的。离散相模拟中,随着离散相黏度的增加,黏度比增加,波长减小,所以液滴直径也会减小。从图中可以看出离散相黏度在0.006 $\text{Pa} \cdot \text{s}$ 时液滴增长趋于平缓,



(a)孔长对液滴影响



(b)孔宽对液滴影响

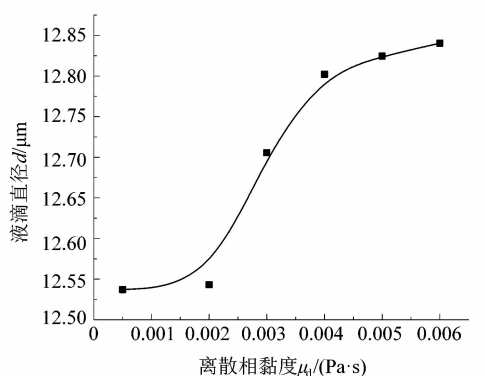
图4 流道缩口尺寸对液滴直径的影响
Figure 4 Impact of orifice size on droplet diameter diagram

这是由于此时黏度比最接近于0.3,液滴增长趋势放缓。在连续相黏度影响因素探究中,如图5(b)所示,连续相黏度的数值一直大于离散相黏度,黏度比小于0.3,随着连续相黏度的增加,黏度比减小,波长增大。图5(c)中可以看出,黏度比越小,液滴直径降低越急速,这与毛细不稳定性所表现出的性质是相符的。从此看出,毛细在聚焦通道中发挥着不可忽视的作用。连续相黏度由0.0115 $\text{Pa} \cdot \text{s}$ 减小到0.0045 $\text{Pa} \cdot \text{s}$,液滴直径增加了7.25%;离散相黏度从0.0005 $\text{Pa} \cdot \text{s}$ 增长到0.006 $\text{Pa} \cdot \text{s}$,液滴直径增加了2.42%。可见改变黏度也是一种行之有效的方式,两相黏度相差较大时,对于液滴直径的改变更有效果。

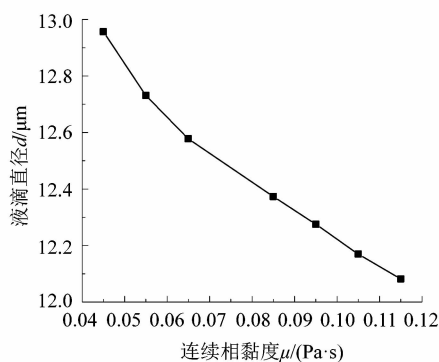
基于这个模型的基础上,文中采用较优的参数进行了初步的实验,如图6所示。大量均匀的液滴在流道下游处产生,由于尺度效应,液滴非常稳定。在实验中通过调节流速和表面张力来控制液滴大小,所产生的液滴大多小于10 μm ,结果比较理想。

5 结语

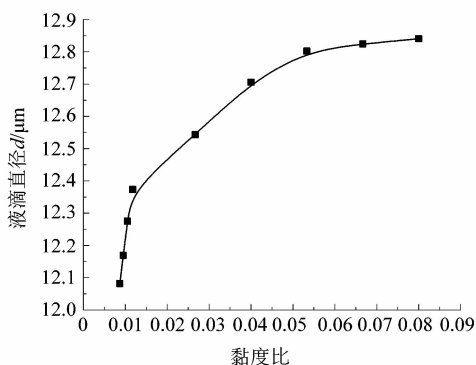
1) 毛细不稳定性在聚焦流道中起着不可忽视的作用。其中液滴直径可以近似表示不稳定性的波长。



(a) 离散相黏度对液滴影响



(b) 连续相黏度对液滴影响



(c) 黏度比对液滴影响

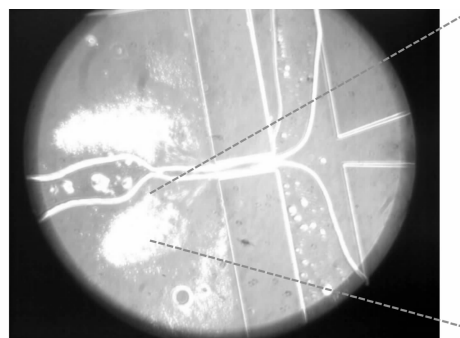
图5 两相黏度对液滴直径的影响

Figure 5 Impact of viscosity on droplet diameter diagram

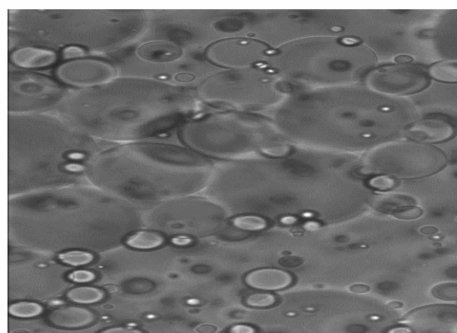
水平集方法可以很好地模拟液滴破碎。

2) 随着连续相黏度的增加,液滴直径是减少的;表面张力增加,液滴直径增加;黏度比在一定范围内增加,液滴直径增加,而且黏度对液滴直径的影响趋势,与黏度对毛细不稳定性波长的影响趋势相同。这3种因素对调节液滴直径有实用性。

3) 改变流道缩口尺寸,对液滴直径也会有影响。相对于改变缩口长度,改变缩口宽度影响更为明显。通过改变尺寸来调节液滴大小并不经济,但可以为流道的设计带来参考价值。



(a) 流道示意图



(b) 产生液滴局部放大图

图6 聚焦流道实验结果图

Figure 6 Result figures of focus flowing channel

参考文献:

- [1] SONG H, ISMAGILOV R F. Millisecond kinetics on a microfluidic chip using nanoliters of reagents [J]. Journal of the American Chemical Society, 2003, 125(47): 14613 - 14619.
- [2] GARSTECKI P, FUERSTMAN M J, STONE H A, et al. Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction-scaling and mechanism of break-up [J]. Lab on a Chip, 2006, 6(3): 437 - 446.
- [3] BOCQUET L, CHARLAIX E. Nanofluidics, from bulk to interfaces [J]. Chemical Society Reviews, 2010, 39(3): 1073 - 1095.
- [4] TAN Y C, CRISTINI V, LEE A P. Monodispersed microfluidic droplet generation by shear focusing microfluidic device [J]. Sensors and Actuators B-Chemical, 2006, 114(1): 350 - 356.
- [5] TAKEUCHI S, GARSTECKI P, WEIBEL D B, et al. An axisymmetric flow-focusing microfluidic device [J]. Advanced Materials, 2005, 17(8): 1067 - 1072.
- [6] SHUI Lingling. Two-phase flow in micro and nanofluidic devices [D]. Enschede: University of Twente, 2009.
- [7] CUBAUD T, MASON T G. Capillary threads and viscous droplets in square microchannels [J]. Physics of Fluids, 2008, 20(5): 1 - 11.
- [8] NIE Z H, SEO M S, XU S Q, et al. Emulsification in a microfluidic flow-focusing device: effect of the viscosities of the liquids [J]. Microfluidics and Nanofluidics, 2008, 5(5): 585 - 594.
- [9] TOMOTIKA S. On the instability of a cylindrical thread of a viscous liquid surrounded by another viscous fluid [J]. Proceedings of Royal Society A: Mathematical Physics & Engineering Sciences, 1935, 150(870): 322 - 337.