



微通道中应用“流动汇聚”形成分散体系*

Shelley L. Anna Nathalie Bontoux Howard A. Stone

Division of Engineering and Applied Sciences, Harvard University, Cambridge, Massachusetts 02138

摘 要 在微流控器件内集成具有流动汇聚功能的几何结构以研究液-液系统中液滴的形成. 相图显示液滴的大小为流量以及两种液体流量比的函数, 它包括两个区域, 在一个区域中液滴大小和孔隙宽度接近, 而在另一区域液滴大小则取决于“汇聚”后的细流直径, 从而能形成远小于孔隙的液滴. 单分散和多分散乳状液均可以被生成.

关键词 微流动, 流动汇聚, 乳化液, 液滴, 多相流

1 引 言

一种液体在另一种不相溶液体中形成的液滴具有广泛的应用, 特别当液滴的大小和分布的尺度在微米或纳米尺度的情况. 例如, 很多个人护理产品、食物^[1]以及经皮给药产品均为乳状液, 纳米乳状液还被提出用于清洁通过某些途径(例如细菌, 生物恐怖制剂等)被感染的表面^[2]. 类似的乳液结构已被考虑用来将液晶液滴有序地输送进光学器件^[3,4]. 在本快报中, 我们将考虑在微流控器件中使用流动汇聚结构以形成单分散和多分散乳状液, 并定性演示随着两种液体流量变化如何控制液滴大小和分布.

乳化方法很多, 但大部分涉及大尺度生产过程中两种液体的混合, 并且很多利用湍流来促进液滴的破碎. 这些基于总体破碎的乳化方法很难控制单个液滴的形成, 并且液滴大小的分布范围很宽^[5]. 另一方面, “自上而下(top-down)”的乳化方法可以在单个液滴生成的层面上进行, 微流控器件很适用于这些微结构的形成^[6]. 例如, Thorsen等人利用微流控器件中的T型接头通过油流和水流的碰撞实现了乳化^[7]. 所获得的液滴大小依赖于两种流动的流量. 类似的用于乳化及两相流的微流控方法也有所报道^[8~12]. 另一方面, Gañán-Calvo 和 Gordillo 生成了直径小于 100 μm 的高度

单分散的气泡, 他们采用了称为毛细流汇聚的技术: 气体通过放置于窄缝之上的毛细管被挤入液体槽中, 同时受压力驱动的外部液体收缩流通过窄缝使气体汇聚成细小射流, 并进一步破碎为相同大小的气泡^[11]. 在另一个不同的实验中, 此几何结构用于在空气中形成液体液滴^[13]. 由这种流动汇聚技术形成的气泡和液滴尺寸通常小于上游毛细管直径并随流量变化.

在本研究中, 我们报告使用流动汇聚几何结构在一种不相溶液体中连续形成另一种液体液滴的实验, 该几何结构是通过软平板印刷(soft lithography)制造方法^[14]集成到平面微槽道的设计. 这样的制造方法可以通过单一步骤快速制备集成的微通道样品^[15]. 用油和水分别作为连续相和离散相, 我们观察到了大范围的液滴形成模式, 它们依赖于各入口液体来流的流量. 我们测量了液滴大小的变化, 它们是油流流量 Q_o 以及内部水流流量与外部油流流量之比 Q_i/Q_o 的函数. 液滴形成的单分散和多分散模式均可出现, 并且根据操作参数的选择, 液滴大小既可以近似不依赖于也可以强烈依赖于流量.

图 1 显示了微流控器件中使用的流动汇聚几何结构: 一种液体流入中间通道而另一种不相溶的液体流入两个外侧通道. 这两种液体被推入位于下游的狭缝. 外部流体施加压力和黏性应力迫

收稿日期: 2008-08-25, 修回日期: 2008-08-29

*American Institute of Physics 惠允版权翻译此文 (Published with kind permission from Applied Physics Letters, Volume 82 © 2003 by AIP), 关键词是译者加注

使内部流体形成狭窄细流并在狭缝中或狭缝下游处破碎. 在此报告的实验中, 内部流体为蒸馏水而外部流体为硅油 (黏度为 6 mPas), 这可以在连续相油中形成水滴. 0.67 wt% 浓度的 Span 60 表面活性剂 (Sorbitan monooleate, Aldrich) 溶解到油相中. 活性剂溶液通过大约 30 min 的机械混合而成, 并过滤去除结块物质以防止堵塞微通道.

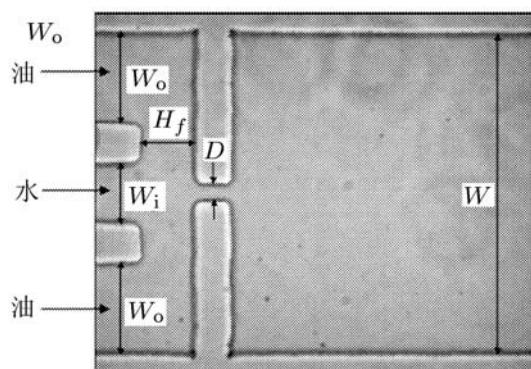


图 1 应用于微控器件流动汇聚的几何结构. 孔隙置于 3 条同轴来流下 $H_f=161\mu\text{m}$ 处. 水流经过中间宽度为 $W_i=197\mu\text{m}$ 的通道, 油流经过两边宽度为 $W_o=278\mu\text{m}$ 的外侧通道. 通道的总宽度为 $W=963\mu\text{m}$, 孔隙的宽度为 $D=43.5\mu\text{m}$. 设备内壁的厚度为 $105\mu\text{m}$; 为了使得玻璃盖片与软硅胶 (PDMS) 之间密封均匀, 此厚度是必需的. 所有通道具有均匀深度 $117\mu\text{m}$. 由于硅油使得 PDMS 膨胀, “设计” 的尺寸稍微不同于实际在此测量的数据.

流体通过软管导入微通道中并采用单独的注射泵控制各个流体的流量. 在此所述的实验中, 外部流体 (油) 的流量 Q_o . 总是大于内部流体 (水) 的流量 Q_i . 我们选择了 3 个不同的流量比, $Q_i/Q_o = 1/4, 1/40, 1/400$, 这里所给的油流流量为全部来流油流的总流量. 针对每个 Q_i/Q_o , 油流的变化达到两个数量级 ($4.2 \times 10^{-5} \text{ ml/s} \leq Q_o \leq 8.3 \times 10^{-3} \text{ ml/s}$). 对各个 Q_o 和 Q_i 值, 采用倒置式显微镜和高速照相机对液滴形成进行可视化观测.

在图 2(a) 中, 我们显示了直径与孔隙宽度接近的几乎呈单分散水滴的形成. 破碎发生在孔隙内. 此外, 液滴可以在孔隙内破裂从而以有规律并可重复的方式形成一个或多个卫星液滴. 图 2(b) 显示了此类破碎过程, 这自然地形成了双分散悬浮颗粒.

我们已经进行的很多实验记录了在具有流动汇聚结构的微通道中两相液-液分散体系的形成. 图 3 显示了对应于我们所观测范围的相图. 我们观测到在一定流量范围能够形成大小与孔隙尺

度近似相等的单分散液滴, 参见图 3(a)~(d), (g) 和 (m). 在某些情况下当液滴在孔隙下游碰撞时会发生合并, 参见图 3(a)~(c) 和 (m). 在低流量条件下能发生这样的碰撞, 因为此时液滴难以迅速向下游移动. 原则上恰当使用表面活性剂来稳定液滴可减少合并. 在其他条件下, 通常对应于油流高流量和低 Q_i/Q_o 比 (图 3(h)~(j) 和 (n)~(p)), 我们观测到双离散及多离散液滴分布. 最后, 在外流作用下可以产生内部液体的丝状细流, 从而可以形成直径比孔隙宽度小得多的液滴 (图 3(k), 3(q)) 这和 Gañán-Calvo 等人的流动汇聚研究类似.

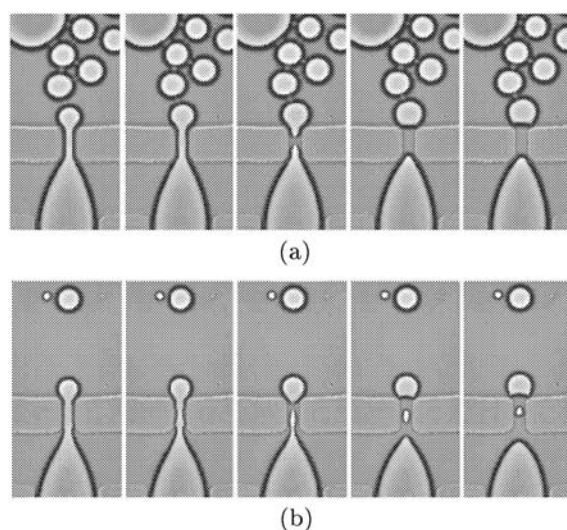


图 2 发生在流动汇聚孔隙内液滴破碎的实验图像. (a) 均匀尺寸液滴的形成, 没有可见的卫星气泡; 破碎发生在缝隙内. 图像之间的时间间隔为 $1000\mu\text{s}$; $Q_o = 8.3 \times 10^{-5} \text{ ml/s}$, $Q_i/Q_o = 1/4$. (b) 小卫星液滴伴随每个大液滴; 破碎发生在缝隙内两个对应位置. 图像之间的时间间隔为 $166\mu\text{s}$; $Q_o = 4.2 \times 10^{-4} \text{ ml/s}$, $Q_i/Q_o = 1/40$.

总之, 我们采用软平板印刷制造技术将流动汇聚结构集成到微流动设备中. 工作相图显示液滴大小为流量以及流量比的函数, 单分散和多分散分布体系均能形成. 所产生的最小液滴可以比孔隙半径小得多, 在这种情况下, 液滴大小依赖于流量. 同时, 在一定范围的流动条件下, 所形成的液滴直径近似等于孔隙宽度, 同时大小与流量无关. 实际上, 我们制造了大约 $10\mu\text{m}$ 宽的孔隙, 所观测到的最小液滴尺寸在几百纳米范围. 采用这种结构形成液滴提供了令人感兴趣的进行乳化的可能性. 最后, 如 Dreyfus 等人讨论的那样^[16], 值得注意的是在这些小型器件中浸润特性可能至关重要.

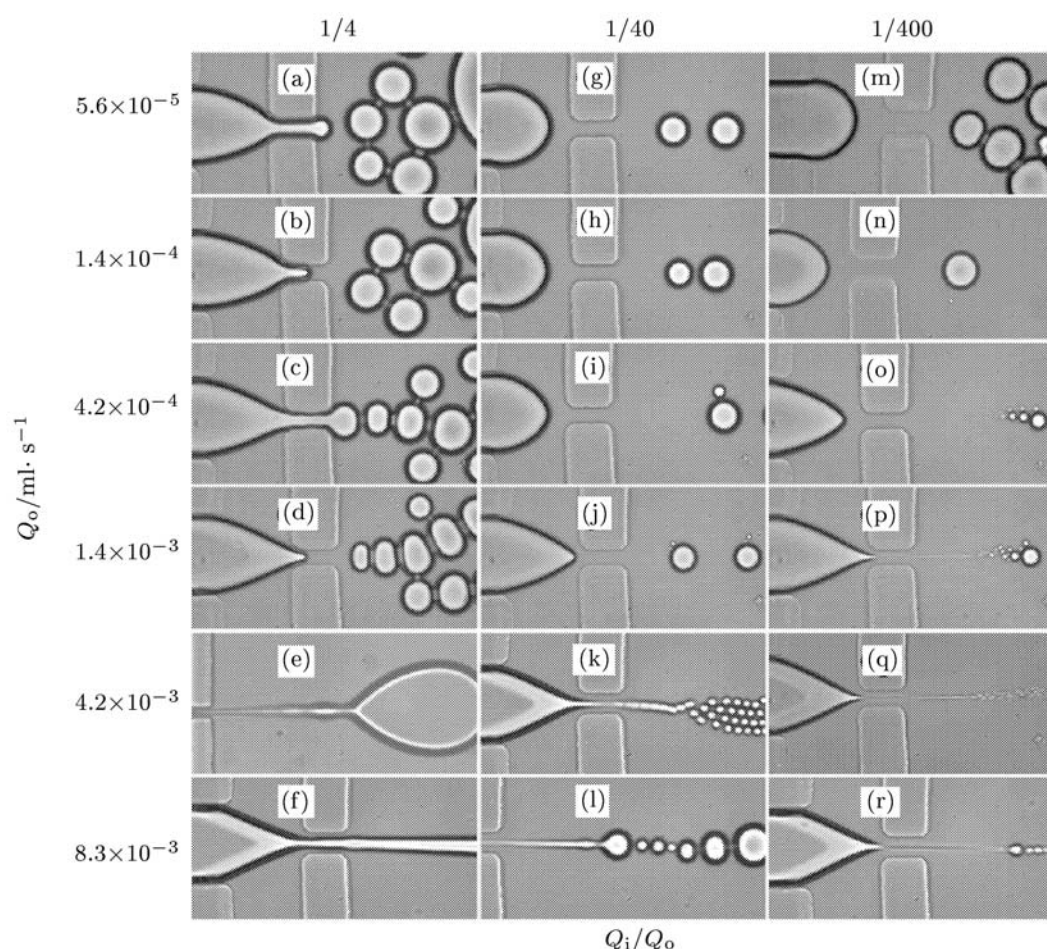


图 3 流动汇聚中液滴形成的相图. 每张图代表了在特定 Q_o 值 (行) 和 Q_i/Q_o 值 (列) 所形成液滴大小和液滴模式. 我们注意到在这些流动中油流 (o) 和水流 (i) 的雷诺数 $R = Q/(\nu h)$ 范围为 $0.07 < R_o < 12$ 及 $0.001 < R_i < 18$, 这里 ν 为流体运动黏度, h 为通道高度, 这些值通常比最初研究中的值小 (参见文献 [11,12])

致 谢: 作者感谢 Unilever 公司提供的资助. 作者感谢 T. Jongen 和同事们的有益对话. 作者之一 (S. L. Anna.) 感谢在学习软光刻制造方法过程中 A. Stroock 和 A. Winkleman 提供的帮助. 作者感谢 A. Shen, D. Link 和 D. Weitz 等人的有益讨论.

参 考 文 献

- 1 Wibowo C, Ng K M. *AIChE J*, 2001, 47: 2746
- 2 Hamouds T, Hayes M M, Cao Z, et al. *J Infect Dis*, 1999, 180: 1939
- 3 Matsumoto S, Sugiyama Y, Sakata S, Hayashi T. *Liq Cryst*, 2000, 27: 649
- 4 Filpo G De, Lanzo J, Nicoletta F P, Chidichimo G. *J Appl Phys*, 1998, 84: 3581
- 5 Becher P. *Emulsions: Theory and Practice*. Oxford, UK: Oxford University Press, 2001
- 6 Stone H A, Kim S. *AIChE J*, 2001, 47: 1250
- 7 Thorsen T, Roberts R W, Arnold F H, Quake S R. *Phys Rev Lett*, 2001, 86: 4163
- 8 Haverkamp V, Ehrfeld W, Gebauer K, et al. *Fresenius J Anal Chem*, 1999, 364: 617
- 9 Losey M W, Schmidt M A, Jensen K F. *Ind Eng Chem Res*, 2001, 40: 2555
- 10 Sugiura S, Nakajima M, Seki M. *Langmuir*, 2002, 18: 2854
- 11 Mason T G, Bibette J. *Langmuir*, 1997, 13: 4600
- 12 Gañán-Calvo A M, Gordillo J M. *Phys Rev Lett*, 2001, 87: 274501
- 13 Gañán-Calvo A M. *Phys Rev Lett*, 1998, 80: 285
- 14 McDonald J C, Duffy D C, Anderson J R, et al. *Electrophoresis*, 2000, 21: 27
- 15 Whitesides G M, Stroock A D. *Phys Today*, 2001, 54: 42
- 16 Dreyfus R, Tabeling P, Williams H. (unpublished)

(中国科学院力学研究所 胡国庆 译自

Formation of dispersions using

“flow focusing” in microchannels

Applied Physics Letters, 2003, 82(3): 364~366

清华大学航空航天学院 朱克勤 校)

FORMATION OF DISPERSIONS USING “FLOW FOCUSING” IN MICROCHANNELS

Shelley L. Anna Nathalie Bontoux Howard A. Stone

Division of Engineering and Applied Sciences, Harvard University, Cambridge, Massachusetts 02138

Abstract A flow-focusing geometry is integrated into a microfluidic device and used to study drop formation in liquid-liquid systems. A phase diagram illustrating the drop size as a function of flow rates and flow rate ratios of the two liquids includes one regime where drop size is comparable to orifice width and a second regime where drop size is dictated by the diameter of a thin “focused” thread, so drops much smaller than the orifice are formed. Both monodisperse and polydisperse emulsions can be produced.

Keywords microfluidic, flow focusing, emulsion drop, multiphase flow

~~~~~

## 用于三维裂纹扩展分析的有限 变形不可逆内聚元\*

M. ORTIZ<sup>1,†</sup>      A. PANDOLFI<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Graduate Aeronautical Laboratories, California Institute of Technology, Pasadena, CA 91125, U.S.A.

<sup>2</sup> Dipartimento di Ingegneria Strutturale, Politecnico di Milano, 20133 Milano, Italy

**摘 要** 为了能准确和高效的跟踪动态裂纹扩展, 我们发展了三维有限变形的内聚元和一系列不可逆内聚力关系. 该内聚元通过采用不可逆内聚力关系来控制裂纹两侧物质的逐渐分离和形成自由表面, 这一点可类比为传统有限元对块体材料的离散化. 为了展示该方法的预测能力及便于灵活使用的特点, 我们模拟了 Zehnder 和 Rosakis<sup>[1]</sup> 所做的重物落下动态断裂实验, 值得注意的是该方法可以近似模拟出裂尖的轨迹.

**关键词** 内聚力关系, 有限变形, 三维, 裂纹扩展, 有限元, 动态断裂

### 1 引 言

在有限元研究的文献中, 如何模拟固体中大规模塑性的三维动态裂纹扩展问题很少得到学者的关注 (除参考文献 [2] 外). Marusich 和 Ortiz<sup>[3]</sup> 发展了一个基于连续自适应网格更新的跟踪模拟裂纹的方法, 并将该方法用于模拟垂直高速加工.

其中采用了两种传统的裂纹扩展准则: 分别为距裂尖一定距离处应力达到临界值或应变达到其临界值时, 裂纹便扩展. 通过这种方式, 该方法可以模拟大规模的塑性变形, 裂纹的偏折与分叉, 而且可以模拟出韧性断裂和脆性断裂两种机制的竞争. 但是这种方法由于缺乏对应的网格自动更新技术而不能直接推广到三维情形. 一个更本质的困难

收稿日期: 2008-04-25, 修回日期: 2008-07-30

\*John Wiley & Sons 惠允版权翻译此文 (Published with kind permission from International Journal for Numerical Methods in Engineering, Volume 44 © 1999 by John Wiley & Sons, Ltd)

<sup>†</sup> E-mail: ortiz@madrid-caltech.edu