



## 基于Marangoni效应的液-液驱动铺展过程

赵文景 王进 秦威广 纪文杰 蓝鼎 王育人

### Liquid-liquid-driven spreading process based on Marangoni effect

Zhao Wen-Jing Wang Jin Qin Wei-Guang Ji Wen-Jie Lan Ding Wang Yu-Ren

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 184701 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210485

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210485>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

表面张力对高雷诺数Rayleigh-Taylor不稳定性后期增长的影响

Effect of surface tension on late-time growth of high-Reynolds-number Rayleigh-Taylor instability

物理学报. 2021, 70(11): 114701 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201960>

表面活性剂对气-液界面纳米颗粒吸附规律的影响

Effect of surfactants on adsorption behavior of nanoparticles at gas-liquid surface

物理学报. 2020, 69(2): 026801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190756>

流体黏性及表面张力对气泡运动特性的影响

Influence of viscosity and surface tension of fluid on the motion of bubbles

物理学报. 2017, 66(23): 234702 <https://doi.org/10.7498/aps.66.234702>

夸克介子模型的相图和表面张力

Phase structure and surface tension in quark meson model

物理学报. 2019, 68(18): 181101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190798>

纳米流体液滴内的光驱流动实验及其解析解

Experiments and analytical solutions of light driven flow in nanofluid droplets

物理学报. 2020, 69(6): 064701 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191508>

活性剂对表面声波作用下薄液膜铺展的影响

Effect of surfactants on thin film spreading under influence of surface acoustic wave

物理学报. 2019, 68(21): 214703 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190791>

## 基于 Marangoni 效应的液-液驱动铺展过程\*

赵文景<sup>1)2)</sup> 王进<sup>1)†</sup> 秦威广<sup>1)2)</sup> 纪文杰<sup>2)3)</sup> 蓝鼎<sup>2)3)‡</sup> 王育人<sup>2)3)</sup>

1) (青岛理工大学机械与汽车工程学院, 青岛 266520)

2) (中国科学院力学研究所, 国家微重力重点实验室, 北京 100190)

3) (中国科学院大学工程科学学院, 北京 100049)

(2021 年 3 月 12 日收到; 2021 年 4 月 11 日收到修改稿)

液体表面的液滴运动在微流体和许多生物过程中具有广泛的应用前景. 本文通过研究在液体基底上一种低表面张力液体对另一液体的驱动来理解 Marangoni 效应在自发驱动体系中的作用. 为了研究液体驱动的液滴铺展过程, 建立了以不易挥发性硅油作为驱动溶剂、正十六烷作为受驱动液滴, 以及不同浓度的十二烷基硫酸钠溶液作为基底溶液的实验体系. 通过对正十六烷液滴受驱动铺展动态过程的观察和研究, 发现界面张力梯度对液体驱动的铺展起主导作用. 实验结果表明: 基底溶液浓度主要对正十六烷液滴的最大铺展半径存在影响. 此外, 用经典稳定性分析模型解释了正十六烷在受驱动铺展过程中由液柱破碎成小液滴的原因, 同时得到了失稳特征参数最快不稳定波长与正十六烷液柱半径之间的关系.

**关键词:** 驱动铺展, 液滴运动, 界面失稳, 表面张力

**PACS:** 47.55.nd, 47.50.Gj, 47.20.Dr, 47.55.N-

**DOI:** 10.7498/aps.70.20210485

## 1 引言

两种互不相溶的流体在固体表面形成移动接触线问题<sup>[1]</sup>在许多应用中都很重要, 例如: 药物和食品封装<sup>[2-4]</sup>、靶向运输<sup>[5]</sup>、液滴的自推进<sup>[6]</sup>、表面涂覆<sup>[7]</sup>、生物运动<sup>[8,9]</sup>等. 对于固液界面移动接触线问题, 早在钱学森《物理力学讲义》中就采用分子动理论方法, 自下而上地处理了液体运输中具有标度不变性的流动速度和液体黏度等问题. 基于这一思路, 采用物理力学的研究方法, 从微观结构和物理机制出发来理解移动接触线的各种现象并揭示其机理. 关于液滴在固体基底上的铺展动力学已经成为了一个经典的移动接触线问题. 界面张力和黏性力决定了黏性液滴的铺展速率, 其时间演化通常遵循著名的 Tanner 定律<sup>[10,11]</sup>.

液-液体系的研究最早可以追溯到 1774 年,

Franklin 等<sup>[12]</sup>在实验中描述了一勺油在湖面的铺展. 标度分析是度量接触线自相似扩展的重要手段, Hoult<sup>[13]</sup>研究了石油在海洋面泄漏铺展的标度率. 目前通过建立铺展半径与铺展时间的标度关系成为研究铺展动力学过程的常用方法. 液滴在液体基底上观察到的铺展速度会更快<sup>[14]</sup>. 当两种不同的液体相互接触时, 往往是界面张力梯度引起的 Marangoni 流驱动了铺展<sup>[15]</sup>. 最常见的情况是, 由于表面活性剂浓度不均匀而产生界面张力梯度. 例如, Wodlei 等<sup>[16]</sup>发现, 添加表面活性剂的二氯甲烷 (DCM) 液滴可以自发地在十六烷基三甲基溴化铵 (CTAB) 溶液表面铺展. 分析表明, 其铺展过程是由 DCM 薄膜蒸发引起的 Marangoni 流驱动的.

许多实验和研究<sup>[17-19]</sup>通过测量与 Marangoni 流相关的幂律指数来考察表面活性剂水溶液的铺展动力学. Lee 和 Starov<sup>[20]</sup>研究了当水溶性表面

\* 山东省重点研发计划 (批准号: 2019GGX102023) 和国家自然科学基金 (批准号: U1738118, 11472275) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wangjin@qut.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: landing@imech.ac.cn

活性剂液滴滴在水面时, Marangoni 流驱动其铺展的动态过程. 研究显示, 浓度高于临界胶束浓度的表面活性剂液滴的铺展涉及两个不同阶段, 它们具有不同的幂律指数. 第 1 阶段铺展速度快, 在这阶段液滴中表面活性剂胶束溶解扩散到体相, 在第 2 阶段液滴中表面活性剂耗尽, 铺展速度变慢. 不溶性表面活性剂和可溶性表面活性剂液滴的铺展在第 1 阶段的标度率有所差异, 分别为  $t^{0.75}$  和  $t^{0.5}$ .

目前, 研究在平的液体表面的 Marangoni 铺展问题主要关注四方面 [21]: 1) Marangoni 效应产生的原因是液体之间表面张力差还是表面活性剂(浓度); 2) 铺展液体与基底液体可混溶还是不可混溶; 3) 基底液是薄还是厚; 4) 铺展液体在铺展过程中是否可补充. 本文并未研究单一液体在液体基底的铺展问题, 而是研究在液体基底上一种低表面张力液体对另一液体的驱动. 目前, 此类研究相对较少 [22], 这一研究将有助于理解 Marangoni 效应在自发驱动体系中的作用. 实验通过调整液体基底表面活性剂的浓度来控制正十六烷液滴的浸润状态, 然后用低表面张力的硅油滴加在正十六烷中心, 硅油铺展过程中驱动正十六烷的铺展, 在这一过程中, 观察到了瑞利-普朗特不稳定现象.

## 2 实验装置及实验方法

实验中使用上海阿拉丁生物化学技术有限公司的正十六烷(分析纯, 98%)作为被驱动溶剂, 道康宁公司的不易挥发的硅油(0.65 CST)作为驱动溶剂, 中药集团化学试剂有限公司的十二烷基硫酸钠(化学纯)作为水溶液的溶质. 通过将十二烷基硫酸钠(SDS)溶解在去离子水中来制备 SDS 溶液.

为了捕获正十六烷受驱动铺展的整个动态过程, 搭建了一套实验装置. 其中, 高速相机(CCD)和远心镜头用于捕获整个动态过程, 整个装置及基本光路示意图如图 1 所示. 使用平行光源和远心镜头可以清晰地获取液体和液体之间的作用过程. 实验在直径为 150 mm 的培养皿中进行: 基底为 50 mL SDS 溶液, 首先在 SDS 溶液表面沉积 15  $\mu$ L 正十六烷液滴, 之后使用微升注射器在正十六烷液滴正中间滴加 5  $\mu$ L 硅油液滴.

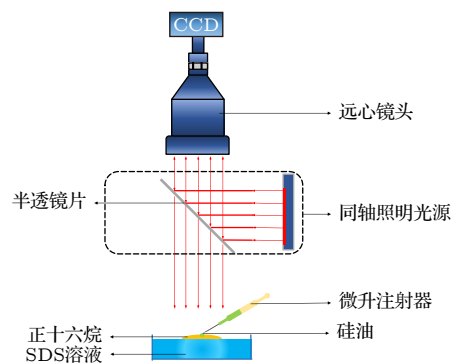


图 1 实验装置示意图

Fig. 1. Schematic diagram of experimental device.

## 3 实验结果及讨论

正十六烷的浸润状态由铺展系数  $S$  控制 [23], 其表达式为

$$S = \sigma_{wa} - (\sigma_{oa} + \sigma_{ow}), \quad (1)$$

其中  $\sigma_{wa}$ ,  $\sigma_{oa}$  和  $\sigma_{ow}$  分别表示水-空气、油-空气和油-水界面的界面张力. 这个参量表明了浸润行为发生的系统中, 纯基底相的表面能与基底上覆盖一层铺展相薄膜之后的总表面能之差. 如果  $S > 0$ , 则纯基底表面的能量更高, 从热力学角度说, 铺展相将会覆盖整个表面. 而  $S < 0$  时, 液体只局部铺展, 并以透镜的形式稳定停留于溶液表面. 研究表面还存在一种情况, 铺展系数虽然大于 0, 但铺展相液体并未完全覆盖整个表面, 这种情况被称为膜不完全浸润 [24,25].

通过光学接触角测量仪测量得到的正十六烷的表面张力为  $26.8 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ , 浓度为 5, 6, 7 和 8 mmol/L 的 SDS 溶液表面张力及与正十六烷的界面张力如表 1 所列, 计算所得铺展系数  $S$  的具体数值如表 2 所列.

从表 2 可以看出, 正十六烷在浓度为 5, 6 和 7 mmol/L 的 SDS 溶液表面铺展系数  $S < 0$ , 表

表 1 表/界面张力  $\sigma$  (单位:  $\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$ )  
Table 1. Surface/Interfacial tension  $\sigma$  (in  $\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$ ).

SDS 溶液浓度/( $\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ )	5	6	7	8
表面张力	33.19	32.82	32.62	34.53
与正十六烷界面张力	6.52	6.29	6.56	6.60

表 2 铺展系数  $S$   
Table 2. Spreading coefficient  $S$ .

SDS 溶液浓度/( $\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ )	5	6	7	8
$S$	-0.13	-0.27	-0.74	1.12

现为正十六烷局部铺展,以透镜的形式存在(如图2(a)–(c)所示);而浓度为8 mmol/L时铺展系数 $S > 0$ ,在实验中表现为正十六烷在溶液表面未完全覆盖整个表面,此时正十六烷处于不完全浸润状态(如图2(d)所示).

图3显示了在浓度为8 mmol/L的SDS溶液表面,正十六烷的部分铺展状态图像,其中,正十六烷内侧的红色线条表示硅油-正十六烷界面,正十六烷外侧的黑色线条表示正十六烷-SDS溶液界面.我们注意到,硅油滴入后,正十六烷液滴迅速受驱动由中心向外铺展,由透镜状(图3(a))变为环形带状(图3(b)).由于正十六烷带的内边缘直接受硅油驱动,内外边缘的铺展速度不同,正十六烷带的宽度逐渐减小,直到变为液柱状(图3(c)).之后,正十六烷液柱继续向外铺展(图3(d)),由于表面张力会通过减小半径来使表面积尽可能的小,液柱自发扰动形成波浪形(图3(e)),最终破裂形成一圈小液珠(图3(f)).

在实验中,由于驱动液体(硅油,表面张力为

$15.9 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ )表面张力较小,且不易挥发,与正十六烷和基底溶液之间会形成稳定的界面张力差,这一不同液体之间的张力差异使得硅油对正十六烷产生驱动作用.图4是硅油的驱动作用示意图.首先,硅油滴入后,浸入正十六烷(图4I阶段);之后,硅油接触基底SDS溶液(图4II阶段),在形成稳定界面张力差 $\Delta\sigma$ 的条件下驱动正十六烷向外铺展,此时的界面张力差 $\Delta\sigma$ 可以近似表示为

$$\Delta\sigma = \sigma_{23} + \sigma_2 - \sigma_1 - \sigma_{13}, \quad (2)$$

其中 $\sigma_1$ 和 $\sigma_2$ 分别表示硅油和正十六烷的表面张力; $\sigma_{23}$ 和 $\sigma_{13}$ 分别表示正十六烷与SDS基底溶液之间和硅油与SDS基底溶液之间的界面张力.在接触线 $l_{123}$ 处,由于界面张力差异产生界面张力梯度 $\nabla\sigma$ ,该梯度会驱动正十六烷内半径向外铺展,且在正十六烷内部形成压力梯度 $\Delta P$ ,使正十六烷与基底的接触线 $l_{23}$ 随之向外铺展.实际上由于正十六烷环带的宽度是变化的, $l_{123}$ 处的界面张力梯度会随着环带宽度的变化而变化.

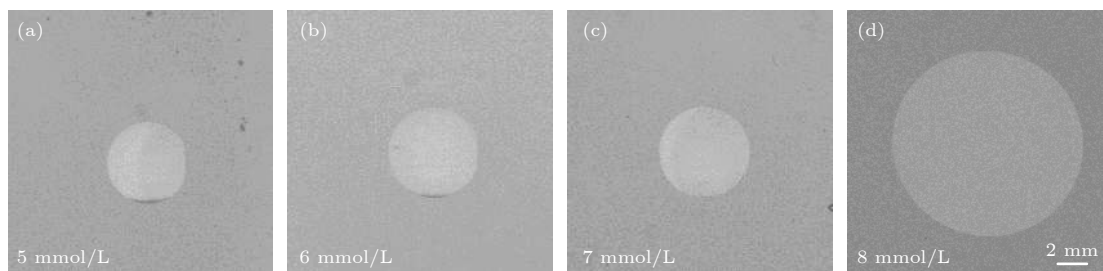


图2 不同浓度SDS溶液表面正十六烷初始铺展状态(比例尺为2 mm)

Fig. 2. Initial spreading state of n-hexadecane on the surface of SDS solutions with different concentrations (scale bar = 2 mm).

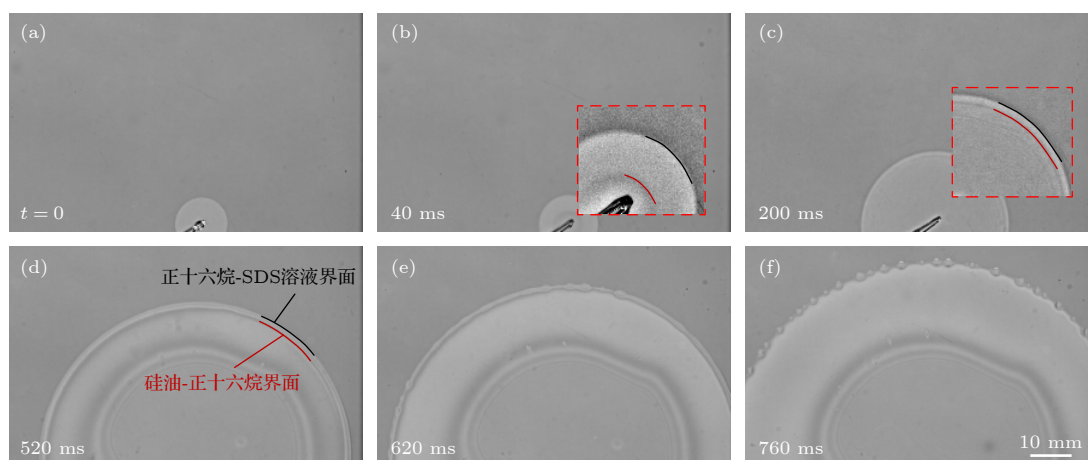


图3 SDS溶液(8 mmol/L)表面正十六烷受驱动铺展过程(比例尺为10 mm)

Fig. 3. Spreading process of n-hexadecane on the surface of SDS solution (8 mmol/L) (scale bar = 10 mm).

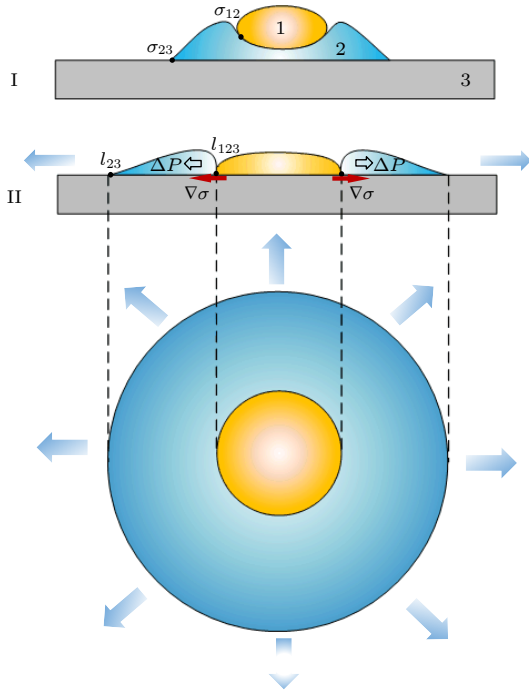


图4 硅油的驱动作用示意图. 1, 2和3分别为驱动溶剂硅油、受驱动溶剂正十六烷和基底 SDS 溶液,  $\sigma_{23}$ 和 $\sigma_{12}$ 分别表示正十六烷与 SDS 基底溶液之间和硅油与正十六烷之间的界面张力,  $\nabla\sigma$ 表示界面张力梯度,  $\Delta P$ 表示压力梯度  
Fig. 4. Schematic diagram of the driving effect of silicone oil. 1, 2 and 3 are driving solvent (silicone oil), driven solvent (n-hexadecane) and aqueous substrate (SDS solution),  $\sigma_{23}$  and  $\sigma_{12}$  represent the interfacial tension between n-hexadecane and SDS solution and between silicone oil and n-hexadecane, respectively.  $\nabla\sigma$  represents the interfacial tension gradient, and  $\Delta P$  represents the pressure gradient.

相同的驱动铺展过程发生在浓度为 5, 6 和 7 mmol/L 的 SDS 溶液表面. 根据实验结果, 将正十六烷液滴的受驱动铺展过程分为两个阶段. 在第一阶段, 正十六烷受驱动由中心向外铺展, 形成圆环 (图 5I). 而在第二阶段, 受驱动环状正十六烷达到极限, 形成环形液柱状, 在表面张力的作用下, 正十六烷液柱破裂形成小液滴 (图 5II).

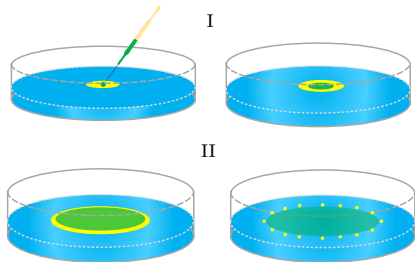


图5 正十六烷液滴受驱动铺展阶段示意图

Fig. 5. Schematic diagram of the driven-spreading stage of n-hexadecane.

在铺展的第一阶段, 正十六烷液滴从中心向外铺展的驱动力来自于稳定界面张力差引起的界面张力梯度. 在铺展过程中, 界面张力梯度与黏性力的平衡发生在液-液界面上, 由于上层液体与下层液体发生动量交换, 造成下层液体出现了速度梯度和黏性边界层 [15]. 由于 SDS 溶液基底厚度 (约为 2.8 mm) 远大于黏性边界层厚度 ( $10^{-3}$  至  $10^{-2}$  mm), 属于 Marangoni 流驱动的厚基底上的铺展, 一般采用黏性边界层近似假设 [15,25,26]. 根据黏性边界层近似假设, 对于由界面张力梯度引起的 Marangoni 流驱动的、不混溶、不易挥发的液体, 当其以恒定浓度在液体载体上呈放射状铺展时, 黏性耗散发生在具有径向速度的界面下方的黏性边界层中 [26]. 此时, 黏性力  $\tau$  可以表示为

$$\tau = \mu U / \delta, \quad (3)$$

式中边界层厚度  $\delta = \sqrt{\mu t / \rho}$ , 其中  $\rho$  为硅油的密度,  $\mu$  为硅油的黏度系数,  $t$  为铺展时间; 径向速度  $U = \frac{dR}{dt}$ ,  $R$  为正十六烷的铺展半径. 界面张力梯度  $\nabla\sigma$  表示为

$$\nabla\sigma = \frac{d\sigma}{dR} \approx S/R, \quad (4)$$

其中  $S$  为系统的铺展系数. 根据平衡界面张力梯度和黏性力得到

$$\mu \frac{dR}{\delta dt} = S/R, \quad (5)$$

即:

$$\mu R \frac{dR}{S} = \sqrt{\frac{\mu t}{\rho}} dt. \quad (6)$$

对 (6) 式进行积分, 得到铺展半径  $R$  关于时间  $t$  的标度关系式:

$$R(t) = \left(\frac{4}{3}\right)^{1/2} \left(\frac{S}{\sqrt{\rho\mu}}\right)^{1/2} t^{3/4}. \quad (7)$$

因此, 受硅油驱动的正十六烷失稳前的铺展半径  $R$  应遵循  $R(t) \propto t^{3/4}$ , 即“3/4”标度律.

图 6 显示了在铺展的第一阶段, 正十六烷在不同浓度的 SDS 溶液表面受硅油驱动的铺展半径  $R$  随时间  $t$  的演变过程. 从图 6 可以看出: 50 ms 内铺展各浓度铺展半径变化几乎一致; 50 ms 后, 随着基底溶液浓度的增加, 铺展半径的最值逐渐增大. 将不同浓度的铺展标度率与“3/4”进行比较, 发现浓度为 5 mmol/L 时, 铺展标度率略小于 3/4, 而浓度为 6—8 mmol/L 时, 铺展标度率略大于

3/4. 总之, 受硅油驱动的正十六烷失稳前的铺展半径与时间的标度关系符合理论  $R(t) \propto t^{3/4}$ .

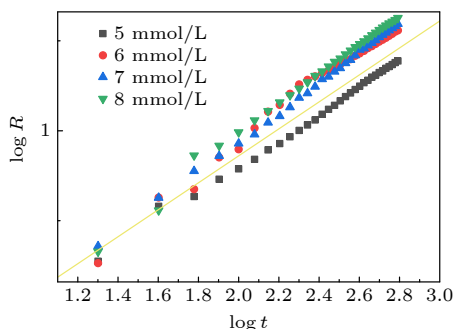


图 6 失稳前不同浓度的 SDS 溶液表面正十六烷铺展半径  $R$  随时间的变化 (在 5, 6, 7 和 8 mmol/L 的 SDS 溶液表面, 正十六烷受驱动铺展的标度率分别为 0.73, 0.80, 0.82, 0.83, 黄线为理论值 0.75)

Fig. 6. Variations of the spreading radius  $R$  of n-hexadecane on the surface of SDS solutions with different concentrations before instability occurs. The driven-spreading scale rate of n-hexadecane is 0.73, 0.80, 0.82, and 0.83 on the surface of 5, 6, 7 and 8 mmol/L SDS solution, respectively. The yellow line is the theoretical rate of 0.75.

在铺展的第二阶段, 正十六烷液柱由于表面张力的作用, 发生破裂形成小液珠, 这种液柱不稳定性被称为瑞利-普朗特不稳定性. Rayleigh<sup>[27]</sup> 对圆柱流体的经典稳定性分析表明, 瑞利-普朗特不稳定存在两个特征参数: 第 1 个是液柱最先发生扰动处的波长  $\lambda_s$ , 被称为最快不稳定波长或增长最快波长; 第 2 个是液柱在失稳前具有恒定不变的半径  $r_c$ . 在无黏性流的情况下, 圆柱流体半径的减小并不均匀, 由于质量守恒的约束, 增长最快波长  $\lambda_s$  与圆柱流体半径  $r_c$  的关系为  $\lambda_s \approx 9r_c$ , 且圆柱流体将会衰变成相同大小的液珠, 液珠半径约为圆柱流体半径  $r_c$ <sup>[28]</sup>. 然而, 在本文的实验体系中, 液体和液体驱动过程中产生的黏性效应改变了液柱表面的法向黏性应力<sup>[29]</sup>, 因此  $\lambda_s$  在短时间内受到影响,  $\lambda_s$  与  $r_c$  的比值将大于 9. 表 3 为不同浓度的 SDS 溶液表面, 正十六烷液柱发生失稳时的  $\lambda_s$  与  $r_c$  的实验值和两项比值. 从表 1 的实验数据可以看出, 实验结果与理论是相符的.

表 3 增长最快波长  $\lambda_s$ 、半径  $r_c$  和  $\lambda_s/r_c$  的实验值  
Table 3. Experimental values of the fastest growing wavelength  $\lambda_s$ , the radius  $r_c$  and  $\lambda_s/r_c$ .

SDS溶液浓度/(mmol·L <sup>-1</sup> )	5	6	7	8
$\lambda_s$ /mm	3.38	3.12	3.04	3.79
$r_c$ /mm	0.36	0.32	0.31	0.41
$\lambda_s/r_c$	9.39	9.75	9.81	9.24

## 4 结 论

本文对受硅油驱动的正十六烷液滴在不同浓度的十二烷基硫酸钠表面的铺展过程进行了详细的实验和动态观察, 研究发现, 界面张力梯度和黏性力在其中起主导作用. 当基底溶液浓度低于临界胶束浓度时, 基底溶液浓度越高, 受驱动溶剂铺展半径的最大值越大; 受硅油驱动的正十六烷失稳前的铺展半径与时间的标度关系符合经典理论值  $R(t) \propto t^{3/4}$ . 之后由于瑞利-普朗特不稳定性, 正十六烷破碎成小液滴. 由于黏性效应, 不稳定时增长最快波长  $\lambda_s$  与液柱半径  $r_c$  的比值大于理论值 9. 对该液体驱动铺展体系的研究有助于理解 Marangoni 驱动的铺展动力学过程和不稳定模式, 对表面化学领域的研究有重要的意义.

## 参考文献

- [1] Yuan Q Z, Shen W H, Zhao Y B 2016 *Adv. Mech.* **46** 343 (in Chinese) [袁泉子, 沈文豪, 赵亚溥 2016 *力学进展* **46** 343]
- [2] Yeo Y, Chen A, Basaran O, Park K 2004 *Pharm. Res.* **21** 1419
- [3] Charve J, Reineccius G 2009 *J. Agric. Food Chem.* **57** 2486
- [4] Blanco-Pascual N, Koldewij R, Stevens R, Montero P, Gomez-Guillen M, Ten Cate A T 2014 *Food Bioprocess Technol.* **7** 2472
- [5] Zhao X, Kim J, Cezar C, Huebsch N, Lee K, Bouhadir K, Mooney D 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **108** 67
- [6] Seemann R, Fleury J B, Maass C C 2016 *Eur. Phys. J.-Spec. Top.* **225** 2227
- [7] Kang D, Nadim A, Chugunova M 2017 *Phys. Fluids* **29** 495
- [8] Roman B, Bico J 2010 *J. Phys. Condens. Matter* **22** 493101
- [9] Elfring G, Goyal G 2015 *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **234** 8
- [10] Tanner L H 1979 *J. Phys. D; Appl. Phys.* **12** 13
- [11] Milchev A, Binder K 2002 *J. Chem. Phys.* **116** 7691
- [12] Franklin B, Brownrigg W, Farish A 1774 *Philos. Trans. R. Soc. Lond* **64** 445
- [13] Hoult D P 1972 *Annu. Rev. Fluid Mech.* **4** 341
- [14] Fraaije J G E M, Cazabat A 1989 *J. Colloid Interface Sci.* **133** 452
- [15] Berg S 2009 *Phys. Fluids* **21** 398
- [16] Wodlei F, Sebilleau J, Magnaudet J, Pimienta V 2018 *Nat. Commun.* **9** 820
- [17] Afsar-Siddiqui A, Luckham P, Matar O 2004 *Adv. Colloid Interface Sci.* **106** 183
- [18] Lee K S, Starov V 2009 *J. Colloid Interface Sci.* **329** 361
- [19] Afsar-Siddiqui A, Luckham P, Matar O 2003 *Langmuir* **19** 703
- [20] Lee K S, Starov V 2007 *J. Colloid Interface Sci.* **314** 631
- [21] Koldewij R, Capellevee B, Lohse D, Visser C W 2019 *Soft Matter* **15** 8525
- [22] Chengara A, Nikolov A D, Wasan D T 2007 *Ind. Eng. Chem. Res.* **46** 2987
- [23] Wilkinson K, Bain C, Matsubara H, Aratono M 2005 *ChemPhysChem* **6** 547
- [24] Bonn D, Ross D 2001 *Rep. Prog. Phys.* **64** 1085

- [25] Bergeron V, Langevin D 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 3152  
[26] Brochardwyart F, Dimeglio J M, Quere D, Degennes P G 1991 *Langmuir* **7** 335  
[27] Rayleigh J 1878 *Proc. London Math. Soc.* **10** 4  
[28] Eggers J, Dupont T 2001 *J. Fluid Mech.* **262** 205  
[29] Frankel I, Wehls D 1987 *J. Fluid Mech.* **185** 361

## Liquid-liquid-driven spreading process based on Marangoni effect\*

Zhao Wen-Jing<sup>1)2)</sup> Wang Jin<sup>1)†</sup> Qin Wei-Guang<sup>1)2)</sup> Ji Wen-Jie<sup>2)3)</sup>  
Lan Ding<sup>2)3)‡</sup> Wang Yu-Ren<sup>2)3)</sup>

1) (School of Mechanical and Automotive Engineering, Qingdao University of Technology, Qingdao 266520, China)

2) (National Microgravity Laboratory, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

3) (School of Engineering Science, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

( Received 12 March 2021; revised manuscript received 11 April 2021 )

### Abstract

Drop dynamics at liquid surfaces is existent in nature and industry, which is of great value in studying droplet self-propulsion, surface coating, and drug delivery, and possesses great potential applications in microfluidics and biological process. Here, we analyze the role of Marangoni effect in the spontaneously driving system by studying the driving effect of a low surface tension liquid at the liquid substrate on another liquid. A three-phase liquid system is established to explore the liquid-driven spreading process, including non-volatile silicone oil as driving solvent, n-hexadecane as driven solvent, and sodium dodecyl sulfate (SDS) solution with different concentrations as aqueous substrates. The spreading process of n-hexadecane driven by silicone oil can be divided into two stages. N-hexadecane is first driven to form a thin rim, and then the rim breaks up into small liquid beads. Afterwards, the driving mechanism, spreading scaling laws and instability characteristic parameters of the liquid-driven spreading process are analyzed theoretically. The analysis of driving mechanism indicates that the differences in surface tension among silicone oil, n-hexadecane and SDS solution cause surface tension gradient at the liquid-liquid interface, which plays a crucial role in spreading the n-hexadecane. The results also demonstrate that the maximum spreading radius of n-hexadecane is affected by the concentration of the aqueous substrate. When the concentration of SDS solution is lower than the critical micelle concentration, the maximum spreading radius of n-hexadecane is proportional to the concentration of SDS solution. Meanwhile, the scaling law between the spreading radius  $R$  and time  $t$  driven by silicone oil conforms to the classical theoretical relation  $R(t) \propto t^{3/4}$ . In addition, the classical analysis model is used to explain the instability pattern of n-hexadecane breaking into small beads from rim in the liquid-driven spreading process, which is called Rayleigh-Plateau instability. The fastest instability wavelength  $\lambda_s$  and the constant radius  $r_c$  of the n-hexadecane liquid rim are related by  $\lambda_s \approx 9r_c$ . Our results prove the applicability of the spreading scaling law to the liquid-driven spreading process, and also help to understand in depth the mechanism of the liquid-driven spreading and the instability pattern in the spreading process.

**Keywords:** driven spreading, drop dynamics, interface instability, surface tension

**PACS:** 47.55.nd, 47.50.Gj, 47.20.Dr, 47.55.N-

**DOI:** 10.7498/aps.70.20210485

\* Project supported by the Key R&D Program of Shandong Province, China (Grant No. 2019GGX102023) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. U1738118, 11472275).

† Corresponding author. E-mail: wangjin@qut.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: landing@imech.ac.cn