



## 液-液驱替动力学研究

秦威广 王进 纪文杰 赵文景 陈聪 蓝鼎 王育人

### Spreading dynamics of liquid-liquid driving

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

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 064701 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20211682

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211682>

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

基于Marangoni效应的液-液驱动铺展过程

Liquid-liquid-driven spreading process based on Marangoni effect

物理学报. 2021, 70(18): 184701 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210485>

T型微通道中液滴半阻塞不对称分裂行为研究

Semi-obstructed splitting behaviors of droplet in an asymmetric microfluidic T-junction

物理学报. 2021, 70(7): 074701 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201171>

单液滴正碰球面动态行为特性实验研究

Experimental investigation on dynamic behavior of single droplet impinging normally on dry sphere

物理学报. 2020, 69(2): 024702 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191141>

单指式微执行器端面冷凝液滴的迁移特性

Migration characteristics of droplet condensation on end surface of single-finger microgripper

物理学报. 2020, 69(18): 186801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200463>

纳米结构及浸润性对液滴润湿行为的影响

Effects of base angle and wettability of nanostructures on droplet wetting behaviors

物理学报. 2021, 70(12): 126101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201584>

超声悬浮甲醇液滴的热诱导雾化现象

Phenomenon study on heat induced atomization of acoustic levitated methanol droplet

物理学报. 2020, 69(18): 184702 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200562>

## 液-液驱替动力学研究\*

秦威广<sup>1)2) #</sup> 王进<sup>1) †</sup> 纪文杰<sup>2)3) #</sup> 赵文景<sup>1)2)</sup>  
陈聪<sup>1)2)</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9月9日收到; 2021年11月4日收到修改稿)

Marangoni 效应是一种液体在界面张力梯度作用下的自发流动行为. 液体界面上液体的 Marangoni 效应在工程技术领域具有重要作用. 本文使用硅油作为驱动液体, 正十六烷作为被驱动液体, 十二烷基硫酸钠溶液作为液体基底, 通过高速相机捕捉正十六烷受驱动铺展的整个过程, 研究了三相液体系统中液滴的 Marangoni 效应. 实验发现, 正十六烷在硅油的驱动下从内向外铺展, 形成液体圆环. 本文根据正十六烷圆环内、外边界铺展行为, 分析了正十六烷内边界和外边界的铺展原理, 并研究了滴入硅油体积对于铺展过程的影响. 研究发现, 正十六烷内边界铺展与单一液滴的铺展规律相同, 正十六烷内边界前期铺展由重力主导, 内边界铺展标度律在  $R \sim t^{1/4}$  到  $R \sim t^{1/2}$  范围. 随后铺展由界面张力梯度主导, 内边界铺展标度律为  $R \sim t^{3/4}$ . 因内边界铺展受重力影响, 内边界的铺展速度与硅油体积成正比. 而正十六烷外边界在硅油驱动下, 因接触角改变而产生界面张力梯度, 在界面张力梯度作用下外边界铺展标度律为  $R \sim t^{3/4}$ .

**关键词:** 三相液体系统, 液滴, Marangoni 效应, 界面张力梯度

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

**DOI:** 10.7498/aps.71.20211682

## 1 引言

润湿研究的是液体在固体 (不互溶的液体) 基底上的铺展现象<sup>[1-4]</sup>. 液体在液体或固体基底上的铺展在生物医疗<sup>[5,6]</sup>、涂层制备<sup>[7]</sup>、微流体控制<sup>[8]</sup>、聚合物材料自组装<sup>[9]</sup>等领域起着关键的作用. 因此研究液体在界面的铺展规律有重要的意义.

人们对于液体铺展的研究已有很久的历史, 早在 1941 年 Harkins<sup>[10]</sup> 给出铺展系数  $S$  的概念:

$$S = \gamma_{12} - (\gamma_{13} + \gamma_{23}),$$

其中  $\gamma_{ij}$  是  $i$  相流体和  $j$  相流体的界面张力, 为了方便描述将 1 相、2 相、3 相分别定义为空气、水、油. 当  $S > 0$  时, 油滴会在界面张力梯度作用下向外铺展, 最终完全覆盖基底, 并在基底上形成一层均匀的薄油膜. 这种液滴在界面张力作用下向外铺展的现象也叫 Marangoni 效应. 在 1969 年 Fay<sup>[11]</sup> 研究了石油在水面上的铺展问题, 利用量纲分析的方法, 第一次建立了液滴铺展半径与时间的幂指数关系, 揭露了液滴在水面上铺展的力学机制. 这种建立半径与时间幂指数关系研究液体铺展的方法也叫标度分析法. 在此基础之上 Huh 等<sup>[12]</sup>、Foda

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

# 同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: wangjin@qut.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: landing@imech.ac.cn

等<sup>[13]</sup>进一步研究了液滴在厚液体基底上的铺展,用更严谨的数学推导验证 Fay<sup>[11]</sup>的结论.之后 Borgas 等<sup>[14]</sup>推导了液滴在薄液体基底上的铺展.上述工作为研究液滴在液体界面上的铺展奠定了坚实的理论基础.

近些年来,有关液滴铺展的研究层出不穷,并且逐渐向液体系统组成成分多样化、诱导液滴铺展方式多样化、铺展过程中实验现象多样化方向发展.但根据诱导方式可分为热 Marangoni 效应<sup>[15,16]</sup>和溶质 Marangoni 效应<sup>[17–22]</sup>两类.热 Marangoni 效应是温度梯度驱动液滴铺展,通过在液滴中的温度梯度产生界面张力梯度.溶质 Marangoni 效应是溶质浓度梯度驱动液滴铺展,通过液滴内部溶质浓度产生界面张力梯度,例如表面活性剂的吸附,液体的不均匀蒸发等.在很多情况下两种效应耦合驱动液滴铺展.例如, Wodle 等<sup>[3]</sup>将含有表面活性剂的二氯甲烷液滴置入含相同浓度表面活性剂的水溶液中,二氯甲烷液滴向外铺展,同时其边缘周期性地向外放射出液环.该现象是接触线处二氯甲烷的快速挥发增大了液滴边缘表面活性剂浓度,同时降低了液滴边缘温度,进而诱导了热 Marangoni 效应和溶质 Marangoni 效应,两种效应耦合驱动液滴产生独特的铺展行为. Hasegawa 和 Manzaki<sup>[23]</sup>将含异丙醇的水滴置于葵花籽油基底上,异丙醇液滴自发向外铺展,并在液滴边缘产生无数的微小液滴,经分析发现,同样是液滴接触线处异丙醇挥发诱导了溶质 Marangoni 和热 Marangoni 效应,使液滴产生独特的铺展现象.

在液-液驱替铺展同类研究中, Hernández-Sánchez 等<sup>[24]</sup>研究了玻璃基底上异丙醇液滴对于纯水薄膜的驱替铺展,得出薄液体基底上液体的驱替铺展由界面张力梯度主导.与 Hernández-Sánchez 等<sup>[24]</sup>研究不同,我们研究的是厚液体基底上液体的驱替铺展规律.在前期工作中,以十二烷基硫酸钠 (SDS) 水溶液作为基底溶液,研究了甲基硅油对正十六烷的驱替铺展<sup>[25]</sup>,得到了类似的驱动机制:水/正十六烷/硅油液滴接触产生的界面张力梯度,驱动正十六烷向外铺展.正十六烷在硅油驱动下首先会形成一个液体圆环,随后圆环继续铺展发生 Plateau-Rayleigh 失稳,破碎成一圈小液珠.但后续实验中,我们还发现驱动过程和驱动液体的量有关联.本文通过建立正十六烷圆环内外边界半径与时间的标度关系,研究了正十六烷内外边

界的铺展机理,以及滴入硅油体积对于正十六烷圆环内、外边界铺展过程的影响.

## 2 实验装置及实验方法

本文实验体系由硅油、正十六烷、十二烷基硫酸钠 (SDS) 水溶液构成.因实验过程对污染物高度敏感,本文仅使用高纯度化学试剂: PMX-200-0.65cst 硅油 (美国道康宁公司)、正十六烷 (纯度为 99%, 上海阿拉丁生物公司)、十二烷基硫酸钠 (纯度为 88%, 上海国药化学试剂公司), 实验所使用水为高纯度去离子水.

实验装置如图 1 所示,整个装置由可视化系统、直径 140 mm 的无菌塑料培养皿、微量注射器组成.其中用于捕捉实验图像的可视化系统由 CCD 相机 (帧率: 60 frames/s, 分辨率: 2400 pixels  $\times$  2400 pixels), 远心镜头, LED 平行光源构成.

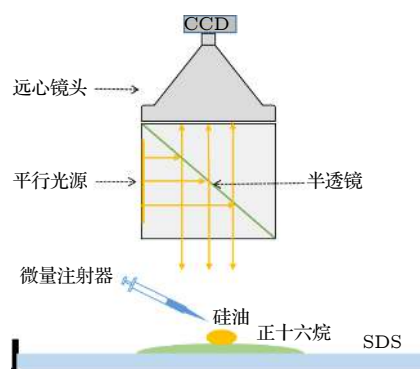


图 1 实验观察装置示意图

Fig. 1. Schematic of the experimental setup.

为了探究硅油体积对受驱动正十六烷铺展过程的影响,设置了 4 组实验.分别选用体积为 2, 5, 10, 15  $\mu\text{L}$  硅油作为驱动液体, 15  $\mu\text{L}$  正十六烷为受驱动液体, 50 mL 的 SDS 溶液作为基底溶液.

## 3 实验结果及讨论

首先,系统地测量了本实验所用的正十六烷、硅油、SDS 溶液的表面张力分别为 26.8, 15.9, 34.53 mN/m, 正十六烷/SDS 界面张力为 6.6 mN/m.

图 2 为 2  $\mu\text{L}$  硅油驱动正十六烷铺展的部分图像.初始时刻,正十六烷稳定地以完整的饼状结构存在 (图 2(a)), 当硅油浸入正十六烷并接触 SDS 溶液界面时,硅油立即向外铺展 (图 2(b)).在硅油驱替作用下,正十六烷形成一个同心圆环 (图 2(b))

和图 2(c)), 其中圆环内边界为硅油与正十六烷边界, 外边界为正十六烷与 SDS 溶液边界. 随着圆环不断向外铺展, 圆环会逐渐收窄变成细液环 (图 2(c) 和图 2(d)), 细液环继续向外移动会发生失稳破碎, 围绕硅油边界形成一圈小液珠 (图 2(d)).

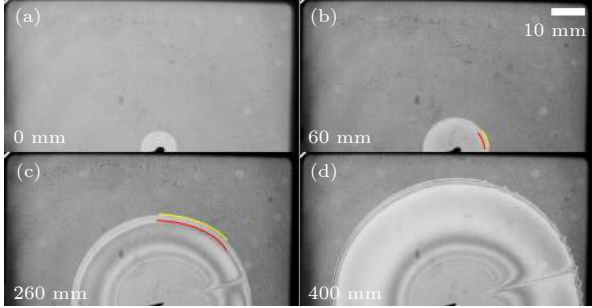


图 2 2  $\mu\text{L}$  硅油驱动正十六烷实验图像, 其中黄线为正十六烷/SDS 基底接触线, 红线为硅油/正十六烷接触线 (比例尺为 10 mm)

Fig. 2. Schematic of spreading process of n-hexadecane driven by 2  $\mu\text{L}$  silicon oil, where the yellow line is the contact line between n-hexadecane and SDS solution, the red line is the contact line between n-hexadecane and silicon oil (scale bar: 10 mm).

这里正十六烷内边界的铺展由界面张力梯度驱动, 水/正十六烷/硅油三相液体相互接触产生界面张力梯度  $\nabla\sigma_{123}$  (如图 3(a)), 可表示为

$$\nabla\sigma_{123} = \sigma_{23} + \sigma_2 - (\sigma_{13} + \sigma_1),$$

式中  $\nabla\sigma_{123} > 0$ , 四相接触线  $L_{123}$  处产生的界面张力梯度  $\nabla\sigma_{123}$  驱动内边界向外铺展. 而外边界铺展不同于内边界, 当内边界铺展启动时, 三相接触线  $L_{23}$  即外边界仍处于平衡状态, 界面张力梯度  $\nabla\sigma_{23} = 0$  (图 3(a)). 之后, 在硅油驱动正十六烷向外铺展的过程中, 三相接触线  $L_{23}$  处接触角逐渐增大, 因此三相接触线  $L_{23}$  处三力  $\sigma_1, \sigma_3, \sigma_{23}$  不再保持平衡, 此时界面张力梯度  $\nabla\sigma_{23} > 0$ , 外边界将在界面张力梯度作用下向外铺展 (图 3(b)).

当界面张力梯度驱动液体铺展时, 上层流体与底层流体的相对运动会在界面产生剪应力  $\tau_s$ , 其值为

$$\tau_s = \left( \eta \frac{\partial v_x}{\partial z} \right)_{z=0}, \quad (1)$$

其中,  $\eta$  为底层流体黏度.  $v_x$  为底层流体沿着水平方向 (正交坐标系  $x$  轴) 的流体速度,  $z = 0$  为水平表面,  $z > 0$  为垂直水平表面向下.

由于流体存在黏性耗散, 流体速度  $V_x$  会沿着  $z$  方向逐渐衰减为零, 根据黏性边界层理论 [26],

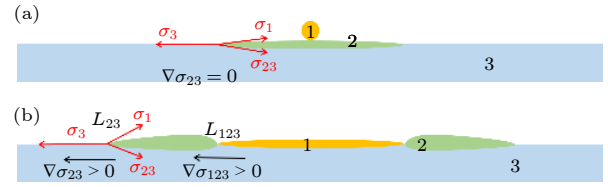


图 3 实验原理图, 其中液体 1, 2, 3 分别为硅油、正十六烷、SDS 溶液;  $L_{123}$  为四相接触线,  $L_{23}$  三相接触线,  $\nabla\sigma_{123}$  和  $\nabla\sigma_{23}$  分别为接触线处  $L_{123}$  和  $L_{23}$  处的界面张力梯度;  $\sigma_i$  为第  $i$  相液体表面张力,  $\sigma_{ij}$  为第  $i, j$  相之间的界面张力

Fig. 3. Experimental schematic diagram, where liquids 1, 2 and 3 are silicone oil, n-hexadecane and SDS solution respectively,  $L_{123}$  is four phase contact line and  $L_{23}$  is three phase contact line.  $\nabla\sigma_{123}$ ,  $\nabla\sigma_{23}$  are Interfacial tension gradient in  $L_{123}$ ,  $L_{23}$  respectively.  $\sigma_i$  is the tension of  $i$  liquid,  $\sigma_{ij}$  is the tension of the  $i, j$  interface.

$V_x(x, z)$  为

$$V_x(x, z) = V_x(x, 0) e^{-mz}, \quad (2)$$

式中  $V_x(x, 0)$  为水平表面的流体速度;  $m^{-1}$  为流体穿透深度其定义为

$$m^{-1} = (\eta t / \rho)^{1/2}, \quad (3)$$

其中  $\rho$  为底层流体密度,  $t$  为时间. 现设  $R$  为上层流体在时间  $t$  内移动的距离, 则  $V_x(x, 0)$  为

$$V_x(x, 0) = \frac{dR}{dt}, \quad (4)$$

将 (2) 式—(4) 式代入 (1) 式, 剪应力  $\tau_s$  可得

$$\tau_s = \left( \frac{\eta\rho}{t} \right)^{1/2} \frac{dR}{dt}, \quad (5)$$

而不混溶流体在另一流体铺展, 界面张力梯度和剪应力相平衡 [26]:

$$\nabla\sigma + \tau_s = 0. \quad (6)$$

$\nabla\sigma$  为界面张力梯度, 假定界面张力梯度在液膜中心至边缘均匀分布, 则

$$\nabla\sigma = d\sigma/dr = S/R, \quad (7)$$

其中  $S$  为铺展系数, 将 (5) 式和 (7) 式代入 (6) 式中可得

$$R(t) = \left( \frac{4}{3} \right)^{1/2} \frac{S^{1/2}}{(\eta\rho)^{1/4}} t^{3/4}, \quad (8)$$

从 (8) 式得到当界面张力驱动液体铺展时, 铺展标度律幂指数为  $3/4$ , 其前置因子仅与基底液体的物性参数和铺展系数有关, 液滴体积不会对铺展过程产生影响. 然而除界面张力作用外, 重力作用也影响液滴的铺展, 液滴体积会影响重力作用主导的液滴铺展过程. Fay [11] 提出液滴的铺展过程可分为

3个阶段,在铺展第1阶段重力和惯性力相平衡:

$$R(t) = (\Delta g V)^{1/4} t^{1/2}, \quad (9)$$

式中,  $\Delta$  为上层液体下层液体密度差,  $V$  为液滴体积,  $g$  为重力加速度.

第2阶段重力和黏性力相平衡:

$$R(t) = \left( \frac{\Delta g V^2}{\eta^{1/2}} \right)^{1/6} t^{1/4}. \quad (10)$$

第3阶段界面张力梯度和黏性力相平衡,如(8)式所示.

可从(9)式和(10)式得知,当重力主导液滴在液体界面上的铺展时,体积作为前置因子对铺展过程有影响,液滴体积越大液滴前期的铺展速度越快,其铺展标度律在前两阶段分别为  $R \sim t^{1/2}$ ,  $R \sim t^{1/4}$ . (9)式和(10)式阐明了液滴体积对液滴铺展过程的影响,也是解释正十六烷铺展速度与硅油体积正相关实验现象的关键.

实验结果显示,正十六烷内边界铺展为重力和界面张力梯度驱动的铺展模式.图4为正十六烷内边界直径随时间变化关系图.在2, 5, 10, 15  $\mu\text{L}$  硅油驱动下,正十六烷内边界直径最大值分别为66.7, 71.2, 72.4, 75.9 mm (图4(a)),内边界铺展直径随硅油体积增大而增大.在0—20 ms内,内边界的铺展标度律在  $R \sim t^{0.29}$  到  $R \sim t^{0.5}$  的范围内,随后标度律向  $R \sim t^{3/4}$  的红线靠近(图4(b)).如(9)式和(10)式所示,当重力主导液滴的铺展时,铺展标度律分别为  $R \sim t^{1/4}$ ,  $R \sim t^{1/2}$ .因此在0—20 ms内,可以认为内边界铺展受重力驱动.当重力驱动液体铺展时,体积为前置因子,驱动液体积越大内边界铺展速度越快.因此正十六烷内边界最大铺展直径随着硅油体积增大而增大.

在20—500 ms内,数据点分布在标度律为  $R \sim t^{3/4}$  的直线上,与界面张力梯度-黏性力模式铺展标度律相一致.因此,可认为正十六烷内边界铺展在经过重力-惯性力铺展阶段、重力-黏性力铺展阶段后,进入界面张力梯度-黏性铺展阶段,正十六烷内边界铺展符合单一液滴在液体界面的铺展规律.总之,硅油体积对于铺展速度有直接影响,其中硅油体积越大,正十六烷内边界铺展速度和铺展直径越大.但硅油体积对于全过程的铺展标度律没有影响,在重力作用阶段,铺展标度律在  $R \sim t^{1/4}$ — $R \sim t^{1/2}$  范围内,在界面张力主导阶段,铺展标度律为  $R \sim t^{3/4}$ .

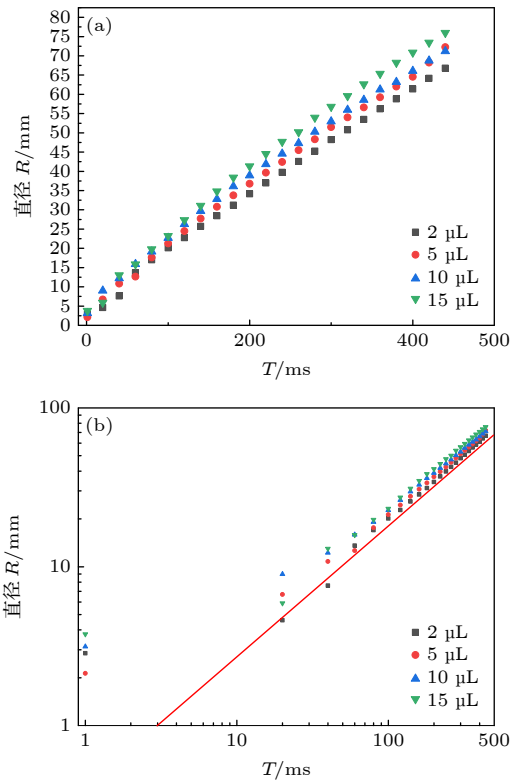


图4 正十六烷内边界直径  $R$  随时间的变化 (a) 线性坐标轴; (b) 双对数坐标轴 (红线斜率为  $3/4$ )

Fig. 4. Diagram of the diameter of n-hexadecane inner boundary over time: (a) Linear axis; (b) dual logarithmic axis (the slope of the red line is  $3/4$ ).

实验结果显示,正十六烷外边界铺展为界面张力梯度驱动的铺展模式.图5给出了正十六烷外边界直径随时间的变化.在2, 5, 10, 15  $\mu\text{L}$  体积硅油驱动下,正十六烷外边界的铺展最大直径为67.86, 73.25, 73.33, 77.15 mm (图5(a)),正十六烷外边界直径也随硅油体积增大而增大.在0—20 ms内,外边界的铺展标度律在  $R \sim t^{0.1}$  到  $R \sim t^{0.15}$  范围内.在  $T_0$ — $T_1$  内,外边界铺展标度律向  $R \sim t^{3/4}$  直线迅速靠近,在  $T_1$  时刻后的线性阶段,数据点分布在标度律为  $R \sim t^{3/4}$  的直线上(图5(b)).

可以认为,在  $T_0$ — $T_1$  内是正十六烷在接触线不断累积的过程.如图3(b)所示,由于中心处硅油的驱动,正十六烷被向外侧挤压,造成接触线  $L_{123}$  处液体厚度的增大,接触线  $L_{23}$  处液体厚度也随之增大,从而导致接触线  $L_{23}$  处的接触角随之增大.接触角变化破坏了接触线  $L_{23}$  处的三力平衡,从而在接触线  $L_{23}$  处产生向外的界面张力梯度.在  $T_1$  时刻后,界面张力梯度主导了正十六烷外边界的铺展,使其铺展标度律接近  $R \sim t^{3/4}$ .

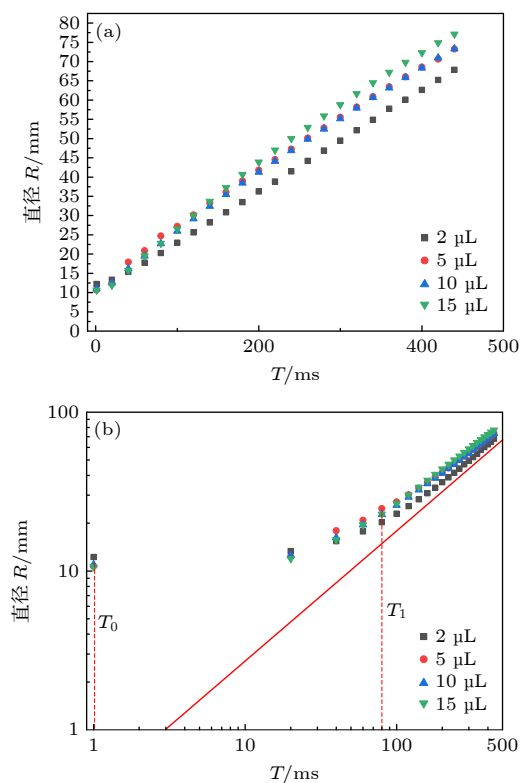


图5 正十六烷外边界直径  $R$  随时间变化图 (a) 线性坐标轴; (b) 双对数坐标轴, 其中红线斜率为  $3/4$ ,  $T_0$  为初始时刻,  $T_1$  是斜率向  $3/4$  靠近的拐点

Fig. 5. Diagram of the diameter of n-hexadecane outer boundary over time: (a) Linear axis; (b) dual logarithmic axis, where the slope of the red line is  $3/4$ ,  $T_0$  is the initial moment,  $T_1$  is the inflection point where the slope approaches  $3/4$ .

图5(a)中, 正十六烷外边界铺展速度与最大铺展直径随硅油体积增大而增大, 是因为硅油体积越大, 其铺展速度越快, 外边界接触角变化速度越快, 使外边界更早进入界面张力梯度主导的铺展模式, 因此外边界铺展速度与最大铺展直径随硅油体积增大而增大。

## 4 结论

本文使用了不同体积的硅油驱动正十六烷, 深入研究了受硅油驱动时正十六烷内外边界的铺展机理, 阐明了硅油体积对正十六烷铺展速度的影响。研究发现, 正十六烷内边界铺展分为两个时期3个阶段。铺展前期: 内边界铺展为重力主导的铺展模式, 经历重力-惯性力铺展阶段、重力-黏性力铺展阶段, 此时期硅油体积越大正十六烷铺展速度越快。铺展后期: 正十六烷内边界铺展为界面张力

梯度-黏性力铺展阶段。

正十六烷外边界铺展分为两个时期。铺展前期: 正十六烷在边界积累, 改变了正十六烷外边界接触线处的接触角, 当接触角变化足够大, 产生足够大的界面张力梯度, 铺展进入第二个时期。铺展后期: 正十六烷外边界铺展为界面张力梯度-黏性力铺展阶段。通过对该液体驱替体系的研究, 将两相液体系统中单一液滴铺展规律拓展到更复杂的液体驱替系统中, 增强了单一液滴铺展规律的普适性, 对表界面化学领域的研究有重要的意义。

## 参考文献

- [1] Gennes P D, Brochard-Wyart F, Quéré D 2004 *Capillarity and Wetting Phenomena-Drops, Bubbles, Pearls, Waves* (New York: Springer-Verlag)
- [2] Sanatkar N, Kulichikhin V G, Malkin A Y, Foudazi R 2018 *Langmuir* **34** 10974
- [3] Wodlei F, Sebilleau J, Magnaudet J, Pimienta V 2018 *Nat. Commun.* **9** 820
- [4] Motaghian M, Shirsavar R, Erfanfiam M, Sabouhi M, Stone H A, van der Linden E, Bonn D, Habibi M 2019 *Langmuir* **35** 14855
- [5] Dugas V, Broutin J, Souteyrand E 2005 *Langmuir* **21** 9130
- [6] Brutin D, Sobac B, Loquet B, Sampil J 2011 *J. Fluid Mech.* **667** 85
- [7] Kim Y K, Na H K, Ham S, Min D H 2014 *RSC Adv.* **4** 50091
- [8] Sellier M, Nock V, Gaubert C, Verdier C 2013 *Eur. Phys. J. Spec. Top.* **219** 131
- [9] Jones A R, Kim C B, Zhou S X, Ha H, Katsumata R, Blachut G, Bonnecaze R T, Ellison C J 2017 *Macromolecules* **50** 4588
- [10] Harkins W D 1941 *J. Chem. Phys.* **9** 552
- [11] Fay J A 1969 *Oil on the Sea* (Boston: Springer) pp53-63
- [12] Huh C, Inoue M, Mason S G 1975 *Can. J. Chem. Eng.* **53** 367
- [13] Foda M, Cox R G 1980 *J. Fluid Mech.* **101** 33
- [14] Borgas M S, Grotberg J B 1988 *J. Fluid Mech.* **193** 151
- [15] Kita Y, Askounis A, Kohno M, Takata Y, Kim J, Sefiane K 2016 *Appl. Phys. Lett.* **109** 171602
- [16] Maljuk A Y, Ivanova N A 2018 *Appl. Phys. Lett.* **112** 103701
- [17] Izri Z, Linden M, Michelin S, Dauchot O 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 248302
- [18] Vernay C, Ramos L, Liguore C 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 198302
- [19] Venerus D C, Simavilla D N 2015 *Sci. Rep.* **5** 16162
- [20] Tan H, Diddens C, Lv P, Kuerten J, Zhang X, Lohse D 2019 *Nat. Commun.* **10** 478
- [21] Keiser L, Bense H, Colinet P, Bico J, Reyssat E 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 074504
- [22] Kim H, Muller K, Shardt O, Afkhami S, Stone H A 2017 *Nat. Phys.* **13** 1105
- [23] Hasegawa K, Manzaki Y 2021 *Phys. Fluids* **33** 034124
- [24] Hernández-Sánchez J F, Eddi A, Snoeijer J H 2015 *Phys. Fluids* **27** 032003
- [25] Zhao W J, Wang J, Qin W G, Ji W J, Lan D, Wang Y R 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 184701 (in Chinese) [赵文景, 王进, 秦威广, 纪文杰, 蓝鼎, 王育人 2021 物理学报 **70** 184701]
- [26] Joos P, Pintens J 1977 *J. Colloid Interface Sci.* **60** 507

# Spreading dynamics of liquid-liquid driving\*

Qin Wei-Guang<sup>1)2)#</sup> Wang Jin<sup>1)†</sup> Ji Wen-Jie<sup>2)3)#</sup> Zhao Wen-Jing<sup>1)2)</sup>

Chen Cong<sup>1)2)</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 9 September 2021; revised manuscript received 4 November 2021 )

## Abstract

Surface tension gradient due to concentration difference and temperature difference induces liquid convection, known as Marangoni effect. The Marangoni effect has been extensively studied to understand its fundamental physics and its industrial applications. In this paper we study Marangoni effect of droplet in a three-phase liquid system. In this system, silicone oil is chosen as a driving liquid, and n-hexadecane is used as a driven liquid. A high-speed camera is used to capture the spreading process of n-hexadecane driven by silicone oil on the sodium dodecyl sulfate (SDS) solution. The experiment shows that n-hexadecane driven by silicone oil spreads from inside out, forming a ring structure. According to spreading dynamic behavior of internal boundary and external boundary of n-hexadecane ring, we study the spreading pattern of internal boundary and external boundary of n-hexadecane ring, and the influence of silicone oil volume on the spreading process. Analysis shows that the spreading law of internal silicone oil conforms to single droplet spreading at the liquid interface. In the initial spreading stage, the spreading of four-phase contact line (internal boundary) among silicone oil, air, n-hexadecane and water are dominated by gravity, The scale law of spreading distance  $R$  of four-phase contact line and  $t$  is in a range of  $R \sim t^{1/4} - R \sim t^{1/2}$ . Owing to the gravity influence, the larger the volume of silicone oil, the faster the four-phase contact line spreads. The volume of silicone oil has no effect on the scaling law of the whole spreading process. The next spreading stage, the spreading of the contact line is dominated by the interfacial tension gradient. The scale law of spreading distance  $R$  and  $t$  conforms to  $R \sim t^{3/4}$ . Under silicone oil driven, the liquid thickness of n-hexadecane at the four-phase contact line (internal boundary) among air, silicone oil, N-hexadecane and water increases, thus changing the contact angle at three-phase contact line (external boundary) among air, n-hexadecane and water. The change of contact angle leads the interfacial tension gradient to produce. The interfacial tension gradient drives external boundary to spread. Because the spreading of the three-phase contact line is dominated by interfacial tension gradient, the scale law of spreading distance  $R$  of three-phase contact line and time  $t$  conforms to  $\sim t^{3/4}$ .

**Keywords:** three-phase liquid system, droplet, Marangoni effect, interfacial tension gradient

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

**DOI:** 10.7498/aps.71.20211682

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

# These authors contributed equally.

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

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