

声悬浮条件下双水相液滴的蒸发与相分离*

贺华丹 钟琦超 解文军†

(西北工业大学物理科学与技术学院, 西安 710129)

(2023年6月11日收到; 2023年12月7日收到修改稿)

采用声悬浮无容器处理技术, 研究了聚乙二醇-硫酸铵 (PEG-AMS) 双水相液滴的蒸发与相分离过程. 双水相液滴蒸发过程中, 液滴赤道直径的平方 d^2 随时间线性减小, 同时液滴纵横比 γ 随时间线性增大. 初始处于单相区的液滴随着水分蒸发可以跨越到双相区, 进而发生相分离. 声悬浮状态下 PEG-AMS 双水相液滴的相分离分为 3 个阶段: 首先液滴内部形成富 PEG 相微滴, 然后富 PEG 相微滴发生碰撞凝并同时向外迁移, 最终液滴形成水平分层结构. 对比分析了不同纵横比及不同成分的双水相液滴的蒸发和相分离过程, 发现纵横比 γ 越大, 富 PEG 相体积分数越小, 则液滴蒸发速率越快; 纵横比 γ 越大, 富 PEG 相体积分数越大, 则液滴相分离越快. 这些发现有助于深入理解声悬浮条件下液滴的运动特性、蒸发动力学和相分离规律, 并为材料的声悬浮无容器制备和加工提供依据.

关键词: 声悬浮, 双水相液滴, 蒸发, 相分离**PACS:** 43.25.Uv, 47.57.E-, 68.03.Fg, 64.75.Va**DOI:** 10.7498/aps.73.20230963

1 引言

声悬浮^[1-4]是一种实现材料无容器制备与加工的重要技术, 可以模拟空间环境中的无容器状态. 声悬浮技术的特点是不受材料电磁性质的限制, 可以对固体^[5,6]、液体^[7,8]甚至气泡^[9,10]进行悬浮, 并且具有较好的悬浮稳定性. 作为一种先进的实验方法, 声悬浮在自由液滴动力学^[11]、材料热物理性质测量^[12]、材料凝固^[13]和化学分析^[14]等研究领域发挥着重要作用.

液滴蒸发是自然界和人类活动中常见的现象, 它在喷雾干燥、冷却系统、气溶胶形成和喷灌等工业过程中具有广泛的应用^[15-18]. 传统的实验方法无法避免液滴与固体基底接触, 给实验带来误差. 声悬浮技术可以为液滴蒸发提供一种理想的无容器非接触环境, 同时, 声场的作用以及液滴内部流

动和外部声流也给液滴蒸发过程带来了新的特征. Yarin 等^[19]发现, 在声场中悬浮的液滴会受到两种类型的环形声流的影响, 即外声流和内声流. 声流一方面可以将地面自然对流转变为强制对流, 加速液滴蒸发, 另一方面又可以捕获水汽, 降低液滴表面周围的浓度梯度, 从而抑制蒸发. Yarin 等^[20]从理论上推导了声悬浮液滴表面的传热传质速率, 并得到了声悬浮条件下单个液滴蒸发过程的 d^2 定律.

相分离是多相体系中的一种普遍现象, 它在合金凝固、材料提纯、药物制备等领域具有重要的应用价值^[21-25]. 然而, 由于大多数材料, 特别是金属材料的不透明性, 限制了对动态相分离过程的实时观测. 双水相体系^[26-28] (aqueous two phase system, ATPS) 是指将两种聚合物或一种聚合物和一种无机盐溶于水所形成的体系. 当溶质的浓度达到某一临界值时, 体系会从混溶状态逐渐分解为互不相溶的上下两相. 由于两个不相溶的水相之间的密度差

* 国家重点研发计划 (批准号: 2021YFA0716301)、国家自然科学基金 (批准号: 52088101, 52225406) 和中国航发产学研合作项目 (批准号: HFZL2021CXY019) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wjxie@nwpu.edu.cn

很小, 分层速度比水-油体系慢, 使得双水相体系成为观察相分离现象的一个理想选择.

本文以聚乙二醇-硫酸铵 (PEG-AMS) 双水相体系为研究对象, 探讨了声悬浮条件下液滴的蒸发和相分离动力学规律. 实验分析了单相液滴和不同成分的双水相液滴的蒸发过程, 揭示了声悬浮条件下双水相液滴的蒸发现象及声场对液滴蒸发的影响机制. 同时, 研究了不同成分的双水相液滴的相分离过程及相分离速度, 揭示了其宏观演变规律.

2 研究方法

图 1 是本文所用的单轴式声悬浮装置的结构示意图, 主要由超声波发生系统、悬浮控制系统和成像系统组成. 发射端产生的超声波经反射端反射后, 在中间区域形成驻波场, 样品悬浮在声压波节处, 调节发射端-反射端间距可以改变波节位置和波节数量. 采用两台彩色数码相机 (SunTime T240C 和 SunTime X11) 分别记录样品的侧视图和底视图, 两台数码相机的图像分辨率均为 $800 \text{ pixels} \times 600 \text{ pixels}$. 为了提高成像质量, 采用 LED 冷光源进行照明.

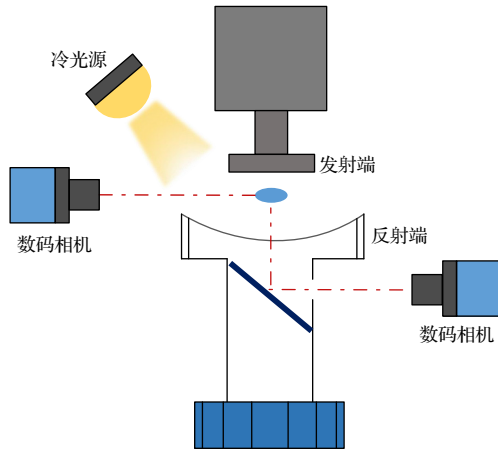


图 1 单轴式声悬浮实验装置示意图

Fig. 1. Schematic diagram of single-axis acoustic levitator.

本文选取聚合物-无机盐双水相体系进行研究, 其中聚合物为聚乙二醇 [PEG, $\text{HO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{H}$], 无机盐为硫酸铵 [AMS, $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$]. 双水相液滴由不同质量分数的 PEG, AMS 和去离子水制备而成. 实验所用 PEG 为阿拉丁试剂, 分析纯, 平均相对分子量为 2000; AMS 为阿拉丁试剂, AR 级分析纯 (99%); 去离子水由 UPT-II 型超纯水机经反渗

透处理后得到.

PEG-AMS 双水相液体相分离后形成富 PEG 的上相和富 AMS 的下相, 为了控制上下两相的体积比, 选择了 3 种成分的双水相液体, 其中上下两相的体积比约为 0.5, 1.0 和 2.0, 如表 1 所列. 同时, 还使用 H_2O -10%PEG-10%AMS 单相溶液进行单相液滴蒸发实验.

表 1 三种成分的 PEG-AMS 双水相液体参数

Table 1. Parameters of three PEG-AMS APTS liquids with different compositions.

序号	成分(质量分数)/%			上下相体积比 V_T/V_B
	H_2O	PEG	AMS	
①	51	22	27	0.47
②	47	32	21	0.96
③	43	43	14	2.08

进行蒸发实验时, 用移液枪吸取混合均匀的双水相液体 $30 \mu\text{L}$, 将其悬浮于声压波节处. 采用两种方法来表征液滴的蒸发过程. 第 1 种方法是经过一段蒸发时间后用棉花吸取悬浮液滴称重来确定液滴质量 m 随时间 t 变化的数据, 获得悬浮液滴的蒸发速率 K , $K = -(1/m_0) \Delta m / \Delta t$, 其中 m_0 为液滴初始质量. 第 2 种方法是用彩色数码相机持续对液滴侧视图进行记录, 然后采用图像处理得到液滴赤道直径 d 和厚度 h 数据, 最后采用 d^2 定律^[20] 计算液滴蒸发常数 K' , 分析液滴蒸发动力学规律, $K' = -(1/d_0^2) \Delta d^2 / \Delta t$, 其中 d_0 为液滴初始赤道直径.

进行双水相液滴的相分离实验时, 采用苋菜红色素作为富 PEG 相的指示剂, 用移液枪吸取混合均匀的双水相液体 $20 \mu\text{L}$ 进行声悬浮. 采用彩色数码相机记录相分离过程中液滴的底视图. 最后采用两种方法来表征液滴相分离过程: 一是分析富 PEG 的红色微滴的数量 n 随时间的演化关系; 二是测量并分析富 AMS 相透明区域的等效直径 D 随时间的演化规律. 等效直径 D 是指与富 AMS 相透明区域面积相等的圆的直径.

声悬浮液滴由于受到重力及不均匀声辐射压力的作用而呈扁球状或圆饼状, 其压扁程度可由纵横比 γ ($\gamma = d/h$) 表示. 为了分析声辐射压力对相分离的影响, 本文采用有限元方法计算了声悬浮液滴上下表面的声辐射压. 采用二维轴对称模型建立与悬浮器的几何形状相对应的仿真域, 整个仿真域

用三角形网格进行划分. 声发射端采用法向速度条件, 反射端采用硬边界条件, 其余边界采用非反射性边界条件. 声压满足的亥姆霍兹方程:

$$\nabla \cdot \left(-\frac{1}{\rho_0} \nabla p \right) - \frac{\omega^2 p}{\rho_0 c_0^2} = 0, \quad (1)$$

式中, p 为声压, ρ_0 为空气密度, ω 为角频率, c_0 为空气中的声速. 在声场计算的过程中, 将悬浮液滴近似为一个扁椭球, 其纵横比采用相应实验数据, 设置发射端法向振动速度和超声频率, 具体参数如表 2 所列. 根据 King 的理论^[29] 计算液滴表面的声辐射压 P_A :

$$P_A = \frac{1}{2\rho_0 c_0^2} \langle p^2 \rangle - \frac{1}{2} \rho_0 \langle v^2 \rangle, \quad (2)$$

式中 v 为介质粒子速度, $\langle \cdot \rangle$ 表示一个振动周期的时间平均值.

表 2 声场模拟采用的物理参数

Table 2. Physical parameters for acoustic simulation.

参数	数值	注释
H_0/mm	34—35	反射端-发射端间距
R_0/mm	40	反射端曲率半径
R_b/mm	20	反射端截面半径
R_a/mm	12	发射端截面半径
H_s/mm	20	样品位置
R_1/mm	2	液滴半长轴
r_1/mm	1	液滴半短轴
$\rho_0/(\text{kg}\cdot\text{m}^{-3})$	1.293	空气密度
$c_0/(\text{m}\cdot\text{s}^{-1})$	340	空气中声速
$v_0/(\text{m}\cdot\text{s}^{-1})$	0.8916	发射端振动速度幅值
f_0/kHz	22	超声波频率

3 结果与讨论

3.1 单相液滴的蒸发过程

图 2(a) 是初始成分处于单相区的液滴 (H_2O -10%PEG-10%AMS) 在蒸发过程中质量随时间的变化. 在液滴初始纵横比 $\gamma \approx 8.1$ 的条件下, 蒸发速率 $K = 1.1 \times 10^{-2} \text{ min}^{-1}$, 随着水分的不断蒸发, 处于单相区的液滴成分发生改变, 从初始处于单相区开始逐渐过渡到双相区, 并发生相分离. 为了确定相分离后两相的成分变化, 首先通过测量电导率的方法确定出各相中 AMS 的浓度 (硫酸铵浓度与电导率的关系如图 3 所示), 再利用双节线最优拟合公式对各相中 PEG 的浓度进行计算^[30]. 图 2(b) 展示了单相液滴蒸发过程中的相分离情况. 图中单

相液滴蒸发时成分沿着箭头所示的方向变化. 开始时, 液滴成分位于双节线下方的单相区; 当 $t = 10, 15, 20, 25, 30 \text{ min}$ 时, 液滴成分位于双节线上方的双相区. 位于双相区的液滴发生相分离, 例如, $t = 30 \text{ min}$ 时, 液滴成分在图中 M 点处, 相分离后富 PEG 相成分处于 T 点, 富 AMS 相成分处于 B 点.

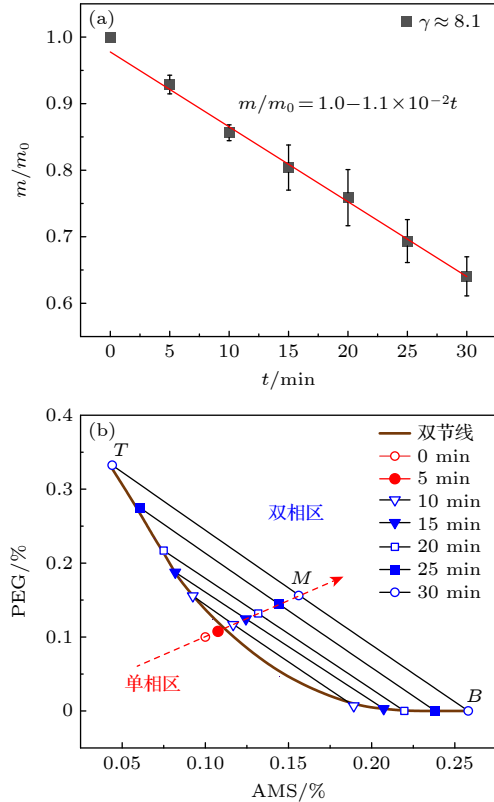


图 2 H_2O -10%PEG-10%AMS 单相液滴的蒸发 (a) 质量随时间的变化; (b) 相分离情况

Fig. 2. Evaporation of H_2O -10%PEG-10%AMS single-phase droplet: (a) Variation of mass with time; (b) phase separation.

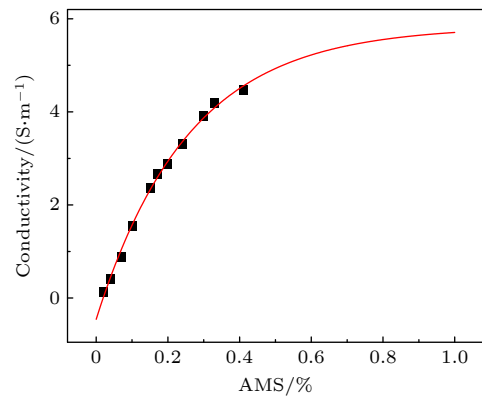


图 3 硫酸铵溶液电导率与浓度 (质量分数) 的关系

Fig. 3. Relationship between conductivity and concentration (mass fraction) of ammonium sulfate solution.

表 3 H₂O-10%PEG-10%AMS 液滴蒸发过程中上、下相的成分变化

Table 3. Compositions of the top phase and bottom phase during evaporation of H₂O-10%PEG-10%AMS droplet.

蒸发时间/min	液滴成分(质量分数)/%			上相成分(质量分数)/%			下相成分(质量分数)/%		
	H ₂ O	PEG	AMS	H ₂ O	PEG	AMS	H ₂ O	PEG	AMS
0	80.0	10.0	10.0	—	—	—	—	—	—
5	78.4	10.8	10.8	—	—	—	—	—	—
10	76.6	11.7	11.7	75.2	15.6	9.2	80.4	0.7	18.9
15	75.2	12.4	12.4	73.0	18.8	8.2	79.0	0.3	20.7
20	73.6	13.2	13.2	70.8	21.7	7.5	78.0	0.0	22.0
25	71.2	14.4	14.4	66.5	27.5	6.0	76.2	0.0	23.8
30	68.8	15.6	15.6	62.4	33.2	4.4	74.2	0.0	25.8

表 3 列出了处于双相区的 5 个成分点(即 $t = 10, 15, 20, 25, 30$ min 时的液滴成分)及相分离后上、下两相的相应成分。

3.2 液滴形状对蒸发速率的影响

对初始成分为 H₂O-10%PEG-10%AMS, 横纵比 $\gamma \approx 2.0, 2.4$ 和 2.9 的三组单相液滴的蒸发情况进行对比, 如图 4 所示。结果表明: 横纵比 $\gamma \approx 2.9$ 的液滴的蒸发速率最大, $K = 6.9 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$; 横纵比 $\gamma \approx 2.4$ 的液滴的蒸发速率 $K = 6.1 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$; 横纵比 $\gamma \approx 2.0$ 的液滴的蒸发速率最小, $K = 5.6 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$; 说明液滴初始横纵比 γ 越大, 则蒸发速率越大。

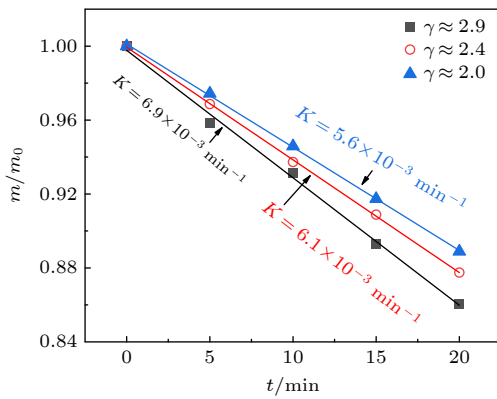


图 4 不同横纵比的 H₂O-10%PEG-10%AMS 液滴蒸发过程
Fig. 4. Evaporation of H₂O-10%PEG-10%AMS droplets with different aspect ratios.

在实际的实验操作中, 通过调节反射端-发射端间距 H_0 来控制液滴横纵比。图 5(a) 是 $H_0 = 34.1$ mm 时声场中的声辐射压分布。当 H_0 逐步减小时, 液滴横纵比逐渐增大, 液滴越来越扁; 当 H_0 逐步增大时, 液滴横纵比逐渐减小, 液滴越来越

接近椭球形。不同 H_0 对应的液滴上下表面的声辐射压, 如图 5(b) 所示, 当 H_0 从 34.8 mm 减小到 34.2 mm 时, 液滴南北极处 ($x = 0$ 处) 受到的

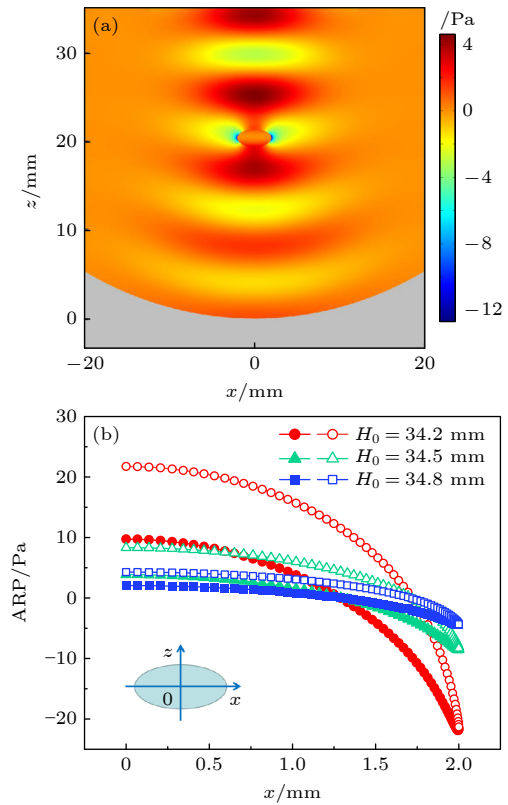


图 5 液滴表面声辐射压分布与反射端-发射端间距 H_0 的关系 (a) $H_0 = 34.1$ mm 时声场中的声辐射压分布; (b) 不同 H_0 对应的液滴上下表面的声辐射压(空心符号和实心符号分别表示液滴上下表面)

Fig. 5. Relationship between the acoustic radiation pressure on the droplet's surface and the reflector-emitter distance H_0 : (a) Distribution of acoustic radiation pressure when $H_0 = 34.1$ mm; (b) acoustic radiation pressure on the upper and lower surfaces of the droplets with different H_0 (the open symbols indicate the data on the upper surface, and the solid symbols the lower surface).

正的声辐射压增强,液滴赤道位置 ($x = 2 \text{ mm}$ 处) 受到的负的声辐射压也增强,导致液滴更加扁平化,横纵比 γ 增大. 液滴蒸发速率与初始横纵比 γ 存在正相关性的原因有两方面: 一方面是 γ 较大时,液滴表面积相对较大,有利于蒸发; 另一方面是 γ 较大时,声场强度较高,引起的声流作用也较强,加速了液滴蒸发.

3.3 初始成分对蒸发速率的影响

对比研究了表 1 中 3 种成分的 PEG-AMS 双水相液滴在相同初始横纵比 ($\gamma \approx 2.7$) 条件下的蒸发过程,如图 6 所示. 图 6(a) 是蒸发过程中液滴赤道直径的平方随时间的演化,根据曲线斜率,可以得到蒸发常数. 结果表明, $V_T/V_B \approx 0.5$ 时,液滴的蒸发常数最大, $K' = 3.5 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$; $V_T/V_B \approx 1.0$ 时,液滴的蒸发常数 $K' = 2.0 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$; $V_T/V_B \approx 2.0$ 时,液滴的蒸发常数最小, $K' = 1.1 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$. 这说明在液滴初始横纵比一定时, V_T/V_B 的值越小,即富 PEG 相占据的体积越小,液滴的

蒸发常数越大. 此外,对比研究了蒸发过程中液滴横纵比 γ 的变化规律,如图 6(b) 所示. 结果表明,3 种成分的液滴在蒸发过程中横纵比 γ 均不断增大,且富 PEG 相占据的体积越大,液滴的压扁程度越严重. 这是因为富 PEG 相的表面张力相对较小^[27],更容易在声辐射压作用下变形. 实验测量发现, $V_T/V_B \approx 0.5, 1.0$ 和 2.0 时,液滴的蒸发速率分别为 $K = 7.1 \times 10^{-3}, 6.9 \times 10^{-3}$ 和 $6.6 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$. 说明富 AMS 相体积占比越大,液滴蒸发速率越大,主要原因是富 AMS 相中水分含量较高,其体积相对较大时,更有利于加速蒸发. 值得注意的是,3 种成分液滴的蒸发速率 K 的差别并不像其蒸发常数 K' 那样十分明显,这是因为 K' 同时包含了液滴的蒸发和变形两方面因素. 一方面,由于富 AMS 相蒸发速率较大,其体积占比越大时,对液滴赤道直径 d 的减小作用越大; 另一方面,由于富 AMS 相的表面张力较大,其体积占比越大时,液滴在声辐射压下的变形越小,对液滴赤道直径 d 的增大作用越弱. 这两方面的综合作用使得图 6(a) 中的 K' 值出现了显著差别. 这也表明,声悬浮条件下采用液滴赤道直径代替其等效球体直径而得到的液滴蒸发常数包含了更多的物理要素.

3.4 双水相液滴的相分离过程

前期研究发现,横纵比 γ 较大的双水相液滴相分离过程中发生水平分层现象^[27]. 为了观察和分析双水相液滴的相分离过程,采用数码相机连续记录了 $\gamma \approx 4.0$ 的 H_2O -32%PEG-21%AMS 液滴的底视图,并选取其中能体现相分离不同阶段特征以及两相形态演化细节的一组图片,如图 7 所示. 在初始时刻,液滴内部出现了大量尺寸不等的富 PEG 相红色微滴(见图 7(a)). 绝大多数富 PEG 相微滴在 86 s 内发生了碰撞和凝并,形成尺寸更大的富 PEG 相微滴(图 7(b)—(d)). 接下来,这些富 PEG 相红色微滴渐渐向外层迁移(图 7(d), (e)),进而在液滴外层形成环状的富 PEG 相红色区域,同时在液滴中心形成一个富 AMS 相透明区域(图 7(f)),富 AMS 相透明区域的面积随着相分离过程的进行不断增大. 有 6—8 个富 PEG 相微滴继续存在了较长时间,约 250 s. 在相分离过程的后期,两相界面向液滴一侧偏移(图 7(g)),最终形成了类似“太极图”形状的水平分层结构(图 7(h)).

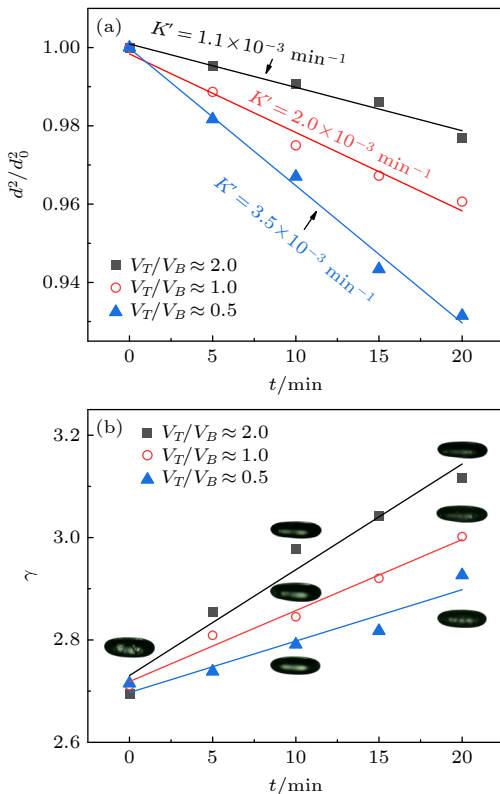


图 6 不同成分相同初始横纵比液滴蒸发过程对比 (a) 赤道直径变化; (b) 横纵比变化

Fig. 6. Evaporation of droplets with different compositions and the same initial aspect ratio: (a) Variation of equatorial diameters; (b) variation of aspect ratios.

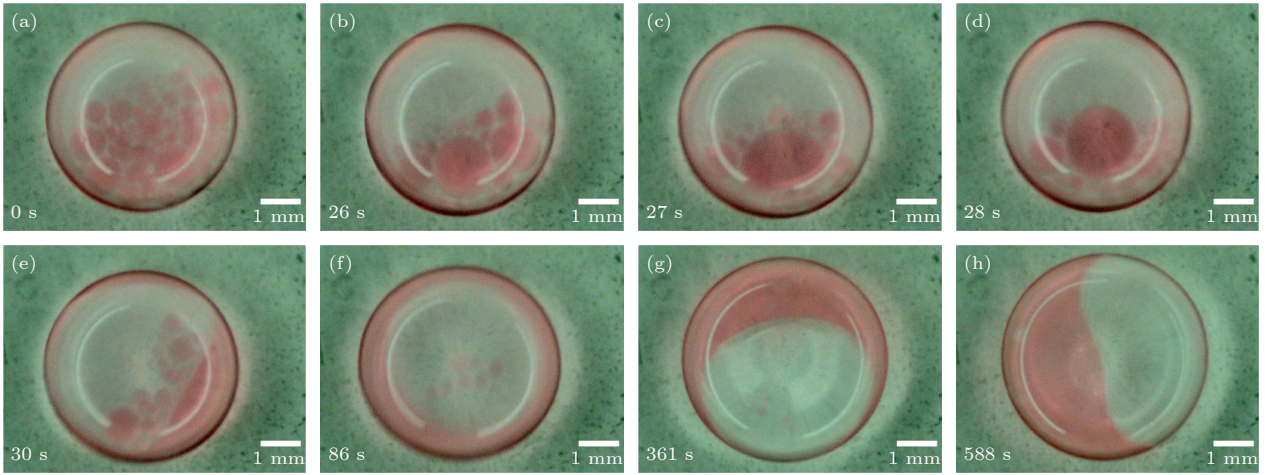


图 7 H₂O-32%PEG-21%AMS 双水相液滴的相分离过程, 红色区域为富 PEG 相, 透明区域为富 AMS 相

Fig. 7. Phase separation of H₂O-32%PEG-21%AMS ATPS droplet. The red area is the PEG-rich phase and the transparent area is the AMS-rich phase.

3.5 双水相液滴的相分离过程分析

采用两种方法分析了声悬浮条件下横纵比 $\gamma \approx 4.0$ 的不同成分的双水相液滴的相分离过程, 一是分析富 PEG 的红色微滴的数量 n 随时间的演化关系; 二是测量并分析富 AMS 相透明区域的等效直径 D 随时间的演化规律. 相分离过程的分析结果如图 8 所示. 图 8(a) 表示富 PEG 相微滴的数量 n 随时间的演化, 对这个演化趋势采用指数关系式 $n = n_0 e^{-t/\tau_n}$ 进行拟合, 式中 n_0 为初始时刻富 PEG 相微滴的数量, τ_n 为富 PEG 相微滴数量演化的弛豫时间, 即 n 下降到原来的 $1/e$ 所需的时间. τ_n 可以表征相分离进程的快慢. 根据数据拟合曲线, 可以发现 $V_T/V_B \approx 2.0$ 时弛豫时间最短, $\tau_n = 42.85$ s; $V_T/V_B \approx 1.0$ 时, 弛豫时间 $\tau_n = 55.76$ s; $V_T/V_B \approx 0.5$ 时弛豫时间最长, $\tau_n = 78.93$ s. 图 8(b) 给出透明区域的等效直径 D 随时间的演化, 其趋势可用指数关系式 $D = D_\infty + (D_0 - D_\infty) e^{-t/\tau_D}$ 进行拟合, 式中 D_0 和 D_∞ 分别为透明区域的初始等效直径和最终等效直径, τ_D 为透明区域等效直径演化的弛豫时间, 即 $(D_\infty - D)$ 值下降到原来的 $1/e$ 所需的时间. τ_D 也可以表征相分离进程的快慢. 可以确定 $V_T/V_B \approx 2.0$ 时弛豫时间最短, $\tau_D = 30.81$ s; $V_T/V_B \approx 1.0$ 时, 弛豫时间 $\tau_D = 46.61$ s; $V_T/V_B \approx 0.5$ 时弛豫时间最长, $\tau_D = 57.78$ s. 综合图 8(a), (b) 的结果, 可以发现两种表征相分离过程的方法得到了一致的结论: $V_T/V_B \approx 2.0$ 时双水相液滴的相分离最快, $V_T/V_B \approx 0.5$ 时液滴的相分离最慢. 这表明富 PEG 相体积占比较大时, 双水相液滴的

相分离更快, 因为富 PEG 相体积占比较大时, 液滴内部富 PEG 相微滴分布较为密集, 声场引起的液滴振荡加强了液滴内部流动, 促进了富 PEG 微滴之间的碰撞、凝并和向外层迁移.

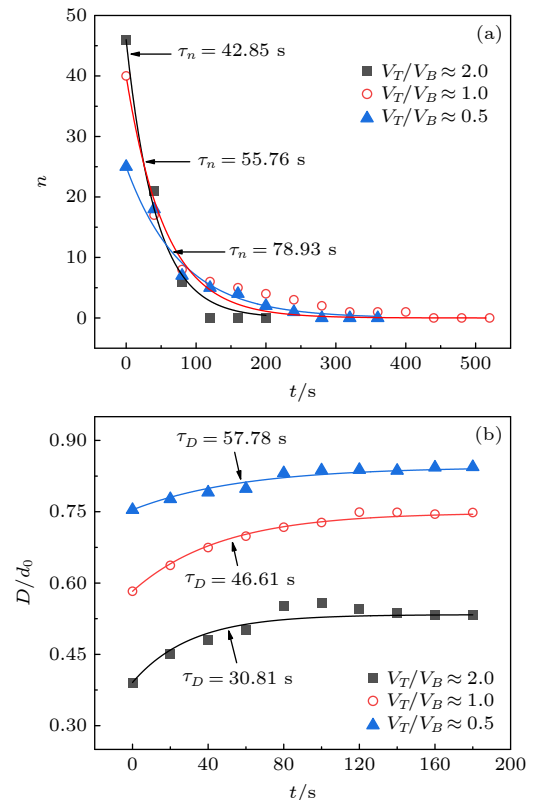


图 8 不同成分双水相液滴的相分离过程分析 (a) 富 PEG 相微滴数量的演化; (b) 富 AMS 透明区等效直径的演化

Fig. 8. Phase separation of ATPS droplet with different compositions: (a) Number of PEG-rich globules vs. time; (b) equivalent diameter of AMS-rich transparent region vs. time.

图 9 比较了声悬浮条件下不同横纵比的 H_2O -32%PEG-21%AMS 液滴的相分离过程. 图 9(a) 给出了富 PEG 相微滴数量的演化过程, 当液滴初始横纵比 γ 分别为 1.8, 2.1 和 3.2 时, 对应的弛豫时间 τ_n 分别为 26.89, 24.16 和 19.18 s, 可见, 液滴初始横纵比越大, 相分离过程中富 PEG 微滴数量下降越快. 图 9(b) 给出了悬浮液滴透明区域等效直径在相分离过程中的演化行为, 当液滴初始横纵比 γ 分别为 1.8, 2.1 和 3.2 时, 相应的弛豫时间 τ_D 分别为 42.53, 38.37 和 29.12 s. 可见, 液滴初始横纵比越大, 富 AMS 相区扩展越快. 综合图 9(a) 和图 9(b) 的结果, 说明对同一成分的双水相液滴, 声悬浮状态下液滴的横纵比越大, 则相分离速度越快. 原因是横纵比较大的液滴其表面声辐射压较大, 内部声流较强, 从而促进了富 PEG 相微滴的碰撞、凝并和向外层迁移.

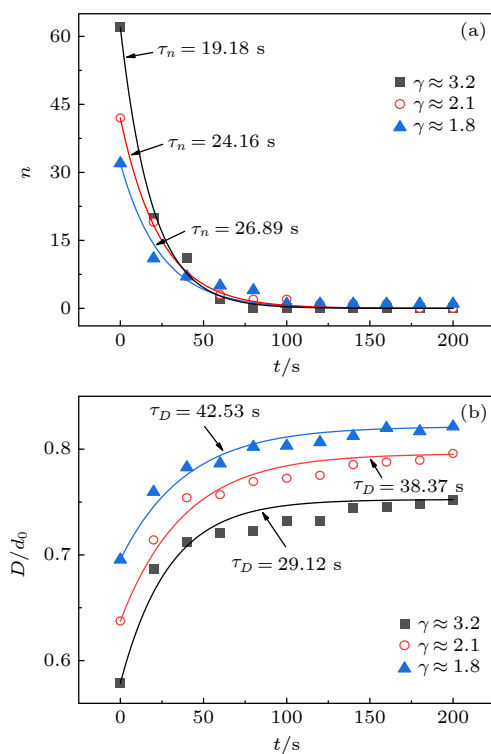


图 9 不同初始横纵比的双水相液滴的相分离过程 (a) 富 PEG 相微滴数量的演化; (b) 富 AMS 透明区等效直径的演化
Fig. 9. Phase separation of APTS droplet with different initial aspect ratios: (a) Number of PEG-rich globules vs. time; (b) equivalent diameter of AMS-rich transparent region vs. time.

4 结 论

本文研究了声悬浮条件下 PEG-AMS 双水相液滴的蒸发和相分离过程, 分析了液滴成分和液

滴形状对蒸发速率和相分离快慢的影响, 主要发现如下.

1) 随着水分的蒸发, 初始状态为单相的液滴成分发生改变, 并从单相区跨向双相区, 最后发生相分离, 实验确定了相分离后富 PEG 的上相和富 AMS 的下相的成分变化.

2) 声悬浮液滴初始横纵比 γ 越大, 相分离后富 PEG 相体积分数越小, 则蒸发速率越快.

3) 声悬浮条件下 PEG-AMS 双水相液滴的相分离过程是: 首先液滴内部形成富 PEG 相微滴, 然后富 PEG 相微滴发生碰撞凝并和向外迁移, 最终形成分层结构.

4) 声悬浮液滴横纵比 γ 越大, 富 PEG 相体积分数越大, 则相分离速度越快.

5) 对液滴表面的声辐射压计算表明, γ 越大, 液滴表面受到的声辐射压越大, 相应的声流作用也较强, 加速了悬浮液滴的蒸发和富 PEG 相微滴的碰撞凝并.

参考文献

- [1] Andrade M A B, Pérez N, Adamowski J C 2018 *Braz. J. Phys.* **48** 190
- [2] Xie W J, Wei B 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 881
- [3] Geng D L, Yan N, Xie W J, Lü Y J, Wei B B 2023 *Adv. Mater.* **35** 2206464
- [4] Andrade M A B, Marzo A, Adamowski J C 2020 *Appl. Phys. Lett.* **116** 250501
- [5] Ami Y B, Manela A 2021 *J. Fluid Mech.* **916** A24
- [6] Polychronopoulos S, Memoli G 2020 *Sci. Rep.* **10** 4254
- [7] Combe N A, Donaldson D J 2017 *J. Phys. Chem. A* **121** 7197
- [8] Bunio L B, Wang J, Kannaiyan R, Gates I D 2022 *Chem. Eng. Sci.* **251** 117441
- [9] Inserra C, Regnault G, Cleve S, Mauger C, Blanc-Benon P 2021 *J. Vis. Exp.* **171** e62044
- [10] Lu X L, Twiefel J, Ma Z C, Yu T T, Wallaschek J, Fischer P 2021 *Adv. Sci.* **8** 2100888
- [11] Xie W J, Wei B B 2004 *Phys. Rev. E* **70** 046611
- [12] Argyri S M, Evenäs L, Bordes R 2023 *J. Colloid Interface Sci.* **640** 637
- [13] Du R J, Xie W J 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 114302 (in Chinese) [杜人君, 解文军 2011 物理学报 **60** 114302]
- [14] Tuckermann R, Puskar L, Zavabeti M, Sekine R, Mcnaughton D 2009 *Anal. Bioanal. Chem.* **394** 1433
- [15] Zaitone B A 2018 *Int. J. Heat Mass Transf.* **126** 164
- [16] Maruyama Y, Hasegawa K 2020 *RSC Adv.* **10** 1870
- [17] Brutin D, Starov V 2018 *Chem. Soc. Rev.* **47** 558
- [18] Junk M, Hinrichs J, Polt F, Fechner J, Pauer W 2020 *Int. J. Heat Mass Transf.* **149** 119057
- [19] Yarin A L, Brenn G, Kastner O, Rensink D, Tropea C 1999 *J. Fluid Mech.* **399** 151
- [20] Yarin A L, Brenn G, Rensink D 2002 *Int. J. Heat Fluid Flow* **23** 471
- [21] Zhai W, Wang N, Wei B B 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2353 (in Chinese)

- Chinese) [翟薇, 王楠, 魏炳波 2007 物理学报 **56** 2353]
- [22] Hoven C V, Dang X D, Coffin R C, Peet J, Nguyen T Q, Bazan G C 2010 *Adv. Mater.* **22** E63
- [23] Zhu J, Jiang L 2022 *Langmuir* **38** 9043
- [24] Qi Y, Qu C R, Wang L, Fang T 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 046401 (in Chinese) [齐玉, 曲昌荣, 王丽, 方腾 2014 物理学报 **63** 046401]
- [25] Zhang P C, Fang W Y, Bao L, Kang W B 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 138701 (in Chinese) [张鹏程, 方文玉, 鲍磊, 康文斌 2020 物理学报 **69** 138701]
- [26] Molino J V D, Marques D A V, Júnior A P, Mazzola P G, Gatti M S V 2013 *Biotechnol. Prog.* **29** 1343
- [27] Zhong Q C, Xie W J 2020 *Appl. Phys. Lett.* **116** 224101
- [28] Chao Y, Shum H C 2020 *Chem. Soc. Rev.* **49** 114
- [29] King L V 1934 *Proc. Roy. Soc. A* **147** 212
- [30] Huddleston J G, Willauer H D, Rogers R D 2003 *J. Chem. Eng. Data* **48** 1230

Evaporation and phase separation of acoustically levitated aqueous two-phase-system drops^{*}

He Hua-Dan Zhong Qi-Chao Xie Wen-Jun[†]

(School of Physical Science and Technology, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710129, China)

(Received 11 June 2023; revised manuscript received 7 December 2023)

Abstract

As a ground-based experimental method for simulating the containerless state in space, acoustic levitation provides excellent containerless and contact-free conditions for studying droplet dynamics, including droplet evaporation and phase separation. Meanwhile, the nonlinear effects of the acoustic field, such as acoustic radiation pressure and acoustic streaming, bring novel characteristics to the droplet evaporation process and phase separation process. In this work, the evaporation and phase separation of aqueous two-phase-system (ATPS) droplet composed of polyethylene glycol (PEG) and ammonium sulfate (AMS) are investigated by a single-axis acoustic levitator through the combination of image acquisition and processing technique. During the evaporation of the ATPS droplet, the square of its equatorial diameter, d^2 , decreases linearly with time, and its aspect ratio, γ , increases linearly with time. The PEG-AMS droplet initially in the single-phase regime can enter into the two-phase regime as the water evaporates, resulting in phase separation. The phase separation of the acoustically levitated PEG-AMS ATPS droplet includes three stages: first, a large number of PEG-rich globules form inside the ATPS droplet, and then these PEG-rich globules collide, coagulate and migrate outward, and finally a horizontal layered structure of the whole droplet comes into being. The evaporation constant, the evolution of the PEG-rich globules and the AMS-rich phase area, are analyzed for ATPS droplets with different initial aspect ratios and different initial compositions. It is concluded that the greater the initial aspect ratio and the smaller the volume fraction of the PEG-rich phase, the faster the evaporation rate of the droplet is; the greater the initial aspect ratio and the larger the volume fraction of the PEG-rich phase, the faster the phase separation is. Numerical simulations show that the acoustically levitated droplets with a large aspect ratio are subjected to greater acoustic radiation pressure on the surface, and that the corresponding sound field is more intense and the acoustic streaming is stronger, which accelerates the evaporation and phase separation of the levitated droplets. These findings contribute to deepening our understanding of the motion characteristics, evaporation dynamics and phase separation of acoustically levitated droplets, and provide a foundation for studying the containerless preparation and processing the materials under acoustic levitation.

Keywords: acoustic levitation, aqueous two-phase-system droplet, evaporation, phase separation

PACS: 43.25.Uv, 47.57.E-, 68.03.Fg, 64.75.Va

DOI: 10.7498/aps.73.20230963

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2021YFA0716301), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 52088101, 52225406), and the AECC Industry-University-Research Collaboration Program, China (Grant No. HFZL2021CX019).

† Corresponding author. E-mail: wjxie@nwpu.edu.cn



声悬浮条件下双水相液滴的蒸发与相分离

贺华丹 钟琦超 解文军

Evaporation and phase separation of acoustically levitated aqueous two-phase-system drops

He Hua-Dan Zhong Qi-Chao Xie Wen-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 034304 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20230963

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20230963>

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

液滴在不同润湿性表面上蒸发时的动力学特性

Dynamics of evaporating drop on heated surfaces with different wettabilities

物理学报. 2018, 67(11): 114702 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180159>

二维情况下两组分带电囊泡形变耦合相分离的理论模拟研究

Theoretical simulations of deformation coupling with phase separation of two-component charged vesicles in a two-dimensional plane

物理学报. 2018, 67(3): 038701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171740>

三区域膜泡相分离模式之间转变的研究

Phase separation pattern transition of three-domain vesicles

物理学报. 2018, 67(18): 188701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180828>

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>

AlGa_N表面相分离的同位微区荧光光谱和高空间分辨表面电势表征

Characterization of phase separation on AlGa_N surfaces by *in-situ* photoluminescence spectroscopy and high spatially resolved surface potential images

物理学报. 2020, 69(12): 127302 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200099>

带电纳米颗粒与相分离的带电生物膜之间相互作用的分子模拟

Molecular simulation of interaction between charged nanoparticles and phase-separated biomembranes containing charged lipids

物理学报. 2019, 68(2): 028701 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181891>