

电场对协流式微流控装置中乳液液滴生成行为的调控机理

李蕾 张程宾

Mechanism for regulation and control of emulsion droplet generation in co-flow microfluidic device via electric field

Li Lei Zhang Cheng-Bin

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 67, 176801 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180616

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180616>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I17>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[微流控技术中双重乳粒尺寸调控规律的研究](#)

Controlled production of double emulsion by microfluid technique

物理学报.2017, 66(4): 046801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.046801>

[仿生多尺度超浸润界面材料](#)

Bioinspired multiscale interfacial materials with superwettability

物理学报.2016, 65(18): 186801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.186801>

[纳观接触角的确定方法](#)

The method for determining nano-contact angle

物理学报.2015, 64(11): 116802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.116802>

[稳定超疏水性表面的理论进展](#)

Theoretical progress in designs of stable superhydrophobic surfaces

物理学报.2013, 62(14): 146801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.146801>

电场对协流式微流控装置中乳液液滴生成行为的调控机理*

李蕾 张程宾†

(东南大学能源与环境学院, 能源热转换及其过程测控教育部重点实验室, 南京 210096)

(2018年4月8日收到; 2018年5月20日收到修改稿)

建立了直流电场作用下协流式微流控装置中单乳液液滴乳化生成过程的非稳态理论模型, 并开展了数值模拟研究, 揭示了电场对液滴乳化生成动力学行为的调控机理, 阐明了流场/电场参数对液滴乳化生成特性的影响规律. 研究表明: 沿流体流动方向施加静电场可在电物性参数不同的两相流体界面法线方向上产生指向内相流体的电场力, 进而强化了内相流体界面的颈缩和断裂, 提升了液滴生成速率和形变程度, 减小了液滴生成尺寸; 在同一毛细数下, 随着电毛细数的增大, 乳液乳化流型由每周期仅有单一液滴生成的滴式流型转变为每周期有一个主液滴并伴随有卫星液滴生成的滴式流型; 随着毛细数和电毛细数的增大, 黏性拖曳力以及电场力作用增强, 使内相流体颈缩过程后期更容易形成细长型液线, 从而有助于诱发液线上产生 Rayleigh-Plateau 不稳定现象, 继而促进卫星液滴的形成.

关键词: 微流控, 液滴, 乳化生成, 电场调控**PACS:** 68.03.Cd, 68.05.-n, 85.85.+j**DOI:** 10.7498/aps.67.20180616

1 引言

微乳液是一种连续相中包含有大量互不相溶离散微小液滴的多相体系, 其在生物医药、化学化工等领域都有着重要应用^[1-3], 因此如何实现乳液液滴的高效可控制备一直是人们关注的焦点. 自21世纪初开始快速兴起的乳液微流控制备技术^[4-6]可以在微小尺度上实现对多相流体的精确操控, 具有制备过程平稳可控、原料消耗少、乳液制备品质高等诸多优势, 故其已成为微乳液制备领域的研究热点^[7-9].

常规微流控乳液制备技术通过调节制备工艺操作参数(如微流道结构、工质流量、工质物性参数等)来改变各相工质的流体力学特性, 从而调控乳液乳化生成行为, 获得所需的乳液制备品质^[10,11]. 然而近些年来, 生物制药^[12]、细胞分选^[13]、惯性约

束聚变制靶^[14]、微电子冷却^[15,16]等前沿科技领域的发展对微流控乳液制备的调控精度与效率提出了更高要求. 但常规微流控技术由于单从各相工质流体力学特性控制的角度来调控乳液乳化生成行为^[17-19], 其调控精度、灵活性及响应速度都有待进一步提升. 为此, 国内外开始寻求将其他物理场主动控制方法与常规微流控技术相结合, 继而发展更为精确高效的微流控乳液制备方法. 值得注意的是, 与其他物理场控制方法相比, 电场调控方法具有环境友好、调节精确、响应迅速等优点. 因此, 近年来电场主动调控手段的引入为常规微流控技术带来了新发展, 电润湿^[20]、电聚结^[21]和电纺丝^[22,23]等一系列新兴微流控技术不断涌现, 如 Zhai 等^[24]和 Luo 等^[25]发现利用电泳技术可以有效分离稀溶液中的染料成分, 并且成功地将其应用于染料废水混合物中有效成分的高效回收. 这为推

* 国家自然科学基金委员会-中国工程物理研究院 NSAF 联合基金(批准号: U1530260)、国家自然科学基金(批准号: 51776037)和江苏省自然科学基金(批准号: BK20170082)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: cbzhang@seu.edu.cn

动微流控乳液制备方法与技术的进步提供了契机. 因此, 准确掌握电场对常规微流控乳液制备过程的调控机制与规律将有助于促进微流控乳液制备技术的发展. 同时, 多物理场耦合作用下的多相流体及相界面动力学行为机理也一直是多相流与界面科学的研究热点, 因此对电场与流场耦合作用下乳液微流控乳化生成行为机理开展深入研究, 还将对进一步完善多相流与界面科学基础理论具有重要的科学意义.

为此, 国内外研究人员通过在常规微流控乳液制备过程中施加电场主动干预, 开展了电场对乳液乳化生成行为调控机理与规律的实验与理论研究. Zhang 和 Basaran^[26] 较早地通过实验研究发现, 在液滴微流控制备过程中引入均匀直流电场, 将会改变液滴生成过程中的相界面演化特征, 进而影响到液滴的生成尺寸及单分散性. 随后, Kim 等^[27] 实验发现在流动聚焦式微流控乳液制备装置中加入直流电场调控可以快速灵活地丰富和控制乳液乳化流型. Tan 等^[28] 则在微流控乳液制备过程中施加了交流电场调控, 实验研究结果表明改变流体电导率和交流电场频率, 液滴生成流型会发生滴式到喷式的转变, 从而使液滴的生成品质产生相应的变化. Wang 等^[29] 和 Ju 等^[30] 以电喷射液滴作为模板, 成功制备了单分散性良好的微球, 实验发现微球大小主要受到喷射流体黏性控制, 而喷射流体的电导率, 流量和喷射口大小则对微球单分散性有着显著影响. 以上研究均通过实验证实了外加电场对微流控乳液乳化的有效调控作用, 但这些工作却多限于对调控效果的展示及影响因素的讨论, 仍缺乏对电场调控机制的深入揭示. 为此, 部分研究人员采用理论建模及数值模拟的方法对微流控乳液乳化生成过程的电场调控机理和规律进行了有益探索. 例如, Notz 和 Basaran^[31] 采用 Galerkin 有限元方法模拟研究了电场对理想导电液体在理想绝缘介质中乳化生成液滴过程的调控作用, 研究较好地复现了 Zhang 和 Basaran^[26] 的实验, 并通过特征时间点的两相界面曲率及界面附近轴向周向速度等关键信息的计算和分析, 探索了液滴生成过程中颈部夹断的机理. Li 等^[32] 则采用 level-set 方法与静电模型耦合, 建立了流动聚焦装置中乳液生成过程的二维模型并进行了数值模拟, 该研究分析了电场力在液滴生成过程中对相界面形貌的调控机理, 并发现电场的引入还能够一定条件下激励内流体相生成纤维状连续液丝^[27]. Gong 等^[33]

采用格子玻尔兹曼伪势模型模拟了微通道内液滴生成过程, 并探讨了电场强度对生成液滴尺寸的影响. 可以看出, 理论建模与数值模拟方法已成为揭示电场对乳液液滴乳化生成行为调控机理的一种有效工具.

综上所述, 虽然当前关于电场主动调控乳液微流控乳化生成过程的实验与理论研究已经取得了一定进展, 但电场对乳化生成流型产生与演化的调控机制尚待深入揭示, 电场参数对乳液生成品质(如乳液液滴乳化生成速率、尺寸、形变程度等)的定量影响规律仍需进一步阐明. 为此, 本文采用基于 Cahn-Hilliard 方程的相场方法(phase-field method)捕捉液-液两相流体界面, 并利用静电模型(electrostatic model, EM)表征电场力作用, 通过电场与多相流体流场控制方程的双向耦合, 建立协流式微流控装置中乳液液滴乳化生成过程的非稳态理论模型, 数值模拟研究引入电场调控对乳液乳化生成过程的影响, 探讨不同流场/电场工况下液滴乳化生成速率、尺寸、形状等品质参数的变化规律, 揭示电场对乳液微流控乳化生成过程中流型产生与演化特性的调控机理.

2 理论模型

2.1 物理模型

协流式微流控乳化装置一般由两个圆柱状毛细管同轴连接而成, 因此, 本文建立了二维轴对称模型加以研究, 其几何模型如图 1 所示, 物理模型几何参数见表 1. 半径 R_i 、壁厚 δ 的内毛细管伸入半径 R_o 的外毛细管中, 两毛细管同轴嵌套安装, 内毛细管伸入外毛细管的长度为 L_2 , 外毛细管沿主流流动方向的总长度为 L_1 . 内相流体以 v_i 的恒定速度从内毛细管中流入外毛细管内, 并在速度为 v_o 的外相流体作用下生成液滴. 为了对该常规协流式微流控乳化装置中乳液乳化生成过程进行电场主动调控, 在外相流体入口处施加恒定电压 U_0 , 并将流体出口处接地. 这样, 便在入口与出口间长度为 L_1 的空间内形成直流电场. 本研究参考水及硅油物性^[34], 假设内、外相工质的密度和黏度相等, 即 $\rho_i = \rho_o = 998.00 \text{ kg/m}^3$, $\mu_i = \mu_o = 1.00 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$. 同时, 内、外相工质的相对介电常数分别为 $\varepsilon_{ri} = 2.20$ 和 $\varepsilon_{ro} = 80.00$, 两相流体之间的界面张力为 $\sigma = 5.00 \times 10^{-4} \text{ N/m}$.

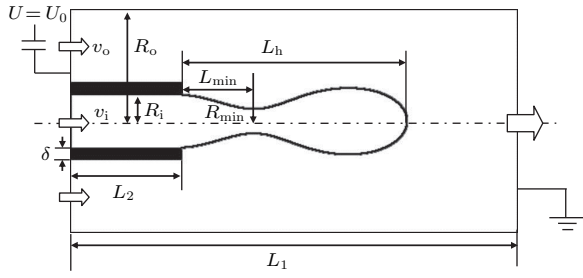


图1 物理模型示意图

Fig. 1. Schematic diagram of physical model.

表1 物理模型几何参数

Table 1. Geometry parameters of physical model.

参数	值
$R_i/\mu\text{m}$	25.0
$R_o/\mu\text{m}$	100
$L_1/\mu\text{m}$	2.00×10^3
$L_2/\mu\text{m}$	100
$\delta/\mu\text{m}$	10.0

2.2 数学模型

本文采用有限元方法直接离散求解两相流质量与动量守恒方程表征两相流体流动,并借助耦合求解基于相场理论的Cahn-Hilliard方程追踪两相界面演化行为.与格子玻尔兹曼方法通过求解粒子速度分布函数的碰撞、迁移演化方程并求矩获得流动信息相比,该方法能够更加直观地反映密度、压力、速度等多相流动信息.并且,与传统流体体积法^[8]、level set方法^[32]求解人为设置的界面追踪方程来刻画相界面相比,基于相场理论的Cahn-Hilliard方程在追踪两相界面演化行为方面更具明确的物理意义.

2.2.1 两相流控制方程

假设两相流体均为互不相溶的不可压缩牛顿流体.同时,本文研究条件下, $Re = \rho_o v_o R_o / \mu_o \leq 0.38$.因此,装置中流体流动状态为层流.据此,两相流体的流动满足如下质量守恒方程和动量守恒方程^[35]:

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0, \tag{1}$$

$$\begin{aligned} & \rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \rho(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} \\ = & \nabla \cdot [-p\mathbf{I} + \mu(\nabla \mathbf{v} + (\nabla \mathbf{v})^T)] \\ & + \rho \mathbf{g} + \mathbf{F}_{st} + \mathbf{F}_{el}, \end{aligned} \tag{2}$$

其中 \mathbf{v} 为速度, t 为时间, p 为压力, \mathbf{I} 为单位向量, \mathbf{g} 为重力加速度, \mathbf{F}_{st} 表示界面张力, \mathbf{F}_{el} 表示电场力.两相间界面张力由下式进行计算:

$$\mathbf{F}_{st} = G \nabla \phi, \tag{3}$$

式中 G 表示化学势,其可通过下式进行计算,

$$G = \lambda \left[-\nabla^2 \phi + \frac{\phi(\phi^2 - 1)}{\alpha^2} \right], \tag{4}$$

其中 λ 为混合能量密度, α 为界面厚度,两者与界面张力系数 σ 的关系可以表示为

$$\sigma = \frac{2\sqrt{2}\lambda}{3\alpha}. \tag{5}$$

相界面的形变、破碎等动力学行为是微流控乳液乳化生成过程中的特征物理现象.因此,本文采用基于Cahn-Hilliard方程的相场方法来定量描述该过程中复杂的相界面行为演化.该方法通过引入相场函数 ϕ 来追踪流场中的两相界面信息:

$$\begin{cases} \phi = -1, & \text{网格充满内相流体;} \\ \phi = 1, & \text{网格充满外相流体;} \\ -1 < \phi < 1, & \text{网格含有相界面.} \end{cases} \tag{6}$$

ϕ 函数由如下Cahn-Hilliard方程求解:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \phi = \nabla \cdot \gamma \nabla G. \tag{7}$$

该方程通常分解为以下两个方程进行处理:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \phi = \nabla \cdot \frac{\gamma^\lambda}{\alpha^2} \nabla \psi, \tag{8}$$

$$\psi = -\nabla \cdot \alpha^2 \nabla \phi + (\phi^2 - 1)\phi, \tag{9}$$

其中 γ 表示迁移率,可以表示为

$$\gamma = \chi \alpha^2, \tag{10}$$

式中 χ 为迁移调节系数,决定Cahn-Hilliard扩散方程中的时间尺度,可根据实际计算收敛情况、各相质量守恒性能及界面追踪精度进行调节.(8),(9)两式分别用于处理相场变量和混合能量密度,由此可以确定液液界面的位置.

内、外相体积分数可以用 ϕ 函数表示为:

$$V_{f_i} = (1 + \phi)/2, \tag{11}$$

$$V_{f_o} = (1 - \phi)/2. \tag{12}$$

由此,工质的密度、黏度和相对介电常数可以表示如下:

$$\rho = V_{f_i} \rho_i + V_{f_o} \rho_o, \tag{13}$$

$$\mu = V_{f_i} \mu_i + V_{f_o} \mu_o, \tag{14}$$

$$\epsilon_r = V_{f_i} \epsilon_{ri} + V_{f_o} \epsilon_{ro}. \tag{15}$$

2.2.2 电场控制方程

为考虑外加电场的影响, 本文采用EM表征电场力作用, 并将电场力 F_{el} 作为体积力项引入到动量方程 (2) 的求解中, 模型中电场部分满足麦克斯韦方程

$$-\nabla \cdot (\epsilon_0 \epsilon_r \mathbf{E}) = 0, \quad (16)$$

其中 ϵ_0 为真空中的介电常数. 电场强度 \mathbf{E} 与电势 V 的关系可以表示为

$$\mathbf{E} = -\nabla V. \quad (17)$$

电场力为麦克斯韦应力张量 \mathbf{T} 的梯度:

$$\mathbf{F}_{el} = \nabla \cdot \mathbf{T}, \quad (18)$$

$$\mathbf{T} = \epsilon_0 \epsilon_r \left[\mathbf{E}\mathbf{E} - \frac{1}{2} \mathbf{E}^2 \mathbf{I} \right]. \quad (19)$$

2.3 边界条件与数值求解方法

计算时, 如图 1 所示计算区域的两相流体入口采用恒定流速边界条件, 出口处则设为 1 atm 恒定压力出口条件, 装置内、外毛细管内壁面均采用无滑移边界条件处理, 内相流体与内毛细管壁面的接触角设定为 145° . 同时, 外相流体入口施加恒定电压边界条件, 流体出口接地, 其余壁面设为零电荷边界.

采用规格化网格对如图 1 所示的协流式微流控装置计算区域进行网格划分, 模型中的控制方程采用有限元方法进行离散, 利用 PARDISO 方法直接求解. 相场方法中, 界面厚度 α 采用 $2.5 \mu\text{m}$, 迁移调节系数 χ 采用 $0.3 \text{ m}\cdot\text{s}/\text{kg}$, 从而在保证界面准确表征的同时将计算量控制在合理范围内. 模拟计

算开始前, 采用不同的网格尺寸与计算时间步长进行网格独立性检验, 以确保模拟结果与计算所采用的网格尺寸和时间步长之间无关联性.

2.4 模型验证

为保证计算结果真实可信, 本文分别从流场、电场以及流场与电场耦合操控液/液相界面行为的不同角度来验证所建立数学模型的合理性. 如图 2 所示, 本文首先对无电场作用时流动聚焦式微流控装置中乳液液滴乳化成行为的数值模拟与可视化实验结果 [36] 进行了对比. 由图可知, 本文数值模拟计算获得的液滴乳化成行为与实验结果取得了较好的一致性. 另外, 基于电绝缘假设, O'Konski 和 Thacher [37] 提出了在均匀直流电场中液滴稳态变形参数的解析解:

$$D = \frac{a-b}{a+b} = Ca_E \frac{9(S-1)^2}{16(S+2)^2}, \quad (20)$$

式中 a 和 b 分别表示变形液滴的长轴和短轴 (见图 3), S 为两相流体相对介电常数之比; $Ca_E = \epsilon_0 \epsilon_r \mathbf{E}^2 R / \sigma$, 其表征了电场力与界面张力之比. 目前, 该解析解的正确性已经获得了广泛认可. 为此, 图 3 对比了液滴稳态变形参数解析解与数值模拟结果. 由图可见, 两者之间符合较好. 此外, 如图 4 所示, 本文进一步将电场作用下流动聚焦式微流控装置中乳液液滴乳化成过程的模拟数据与实验结果 [27] 进行了对比, 并同样取得了较好的一致性. 以上对比分析表明: 本文所建立的理论模型在模拟流场和电场调控液-液相界面行为方面具有合理性和有效性.

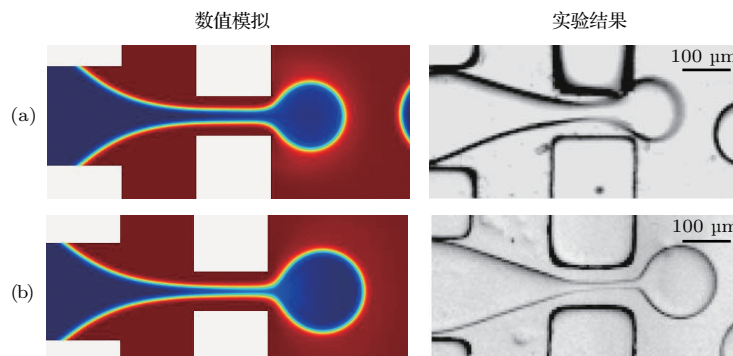


图 2 无电场作用时流动聚焦式微流控装置中乳液液滴乳化成过程中界面形态的数值模拟和实验结果对比 (a) $\mu_i/\mu_o = 20, Q_o/Q_i = 20$; (b) $\mu_i/\mu_o = 50, Q_o/Q_i = 20$

Fig. 2. Comparison of numerical with experimental results of interface profile during droplet formation in flow-focusing microflow device without electric field: (a) $\mu_i/\mu_o = 20, Q_o/Q_i = 20$; (b) $\mu_i/\mu_o = 50, Q_o/Q_i = 20$.

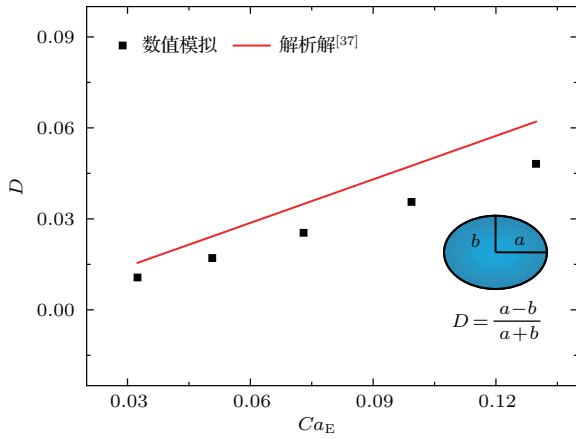


图3 均匀直流电场中液滴稳态变形参数解析解^[37]与数值模拟结果比较

Fig. 3. Comparison between analytical^[37] and numerical results of droplet deformation under uniform direct electric field.

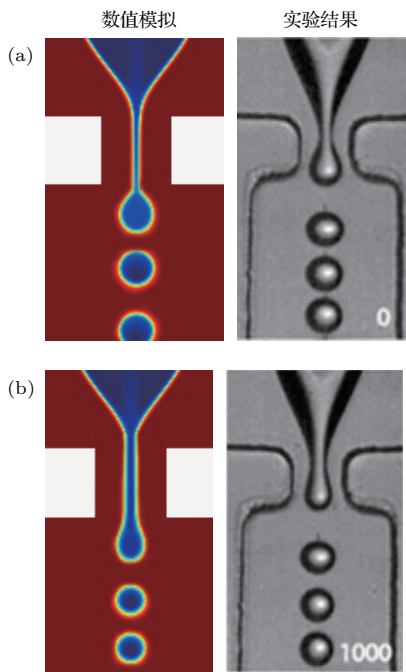


图4 电场作用下流动聚焦式微流控装置中乳液液滴乳化成过程中界面形态的数值模拟和实验结果^[27]对比 (a) $Q_i/Q_o = 80/350$, $U_0 = 0$ V; (b) $Q_i/Q_o = 80/350$, $U_0 = 1000$ V

Fig. 4. Comparison of numerical with experimental results of interface profile during droplet formation in flow-focusing microflow device under electric field: (a) $Q_i/Q_o = 80/350$, $U_0 = 0$ V; (b) $Q_i/Q_o = 80/350$, $U_0 = 1000$ V.

3 结果分析

如图5和图6所示,为阐明电场对微流控装置中乳液液滴乳化成过程的影响,本文对比研究了施加电场前后乳液液滴乳化成特性。

考虑到在本文研究工况下, $Re \leq 0.38$ 且 $We = \rho_i v_i^2 R_i / \sigma \leq 7.2 \times 10^{-4}$,因此惯性力在整个乳液乳化成过程中的影响可以忽略不计,而黏性力、界面张力以及电场力则发挥了主要作用.因此除了引入上文所述的电场毛细数外,采用外相流体毛细数 Ca 来表征黏性力与界面张力之比:

$$Ca = \mu_o v_o / \sigma. \tag{21}$$

定义无量纲时间来定量表征该非稳态过程的时间演化:

$$t^* = \frac{t}{\sqrt{\rho_i R_i^3 / \sigma}}. \tag{22}$$

此外,特别定义乳液液滴乳化成过程中内毛细管出口处内相流体颈部的无量纲最小半径 $R_{min}^* = R_{min} / R_i$ 、最小半径处与内毛细管出口之间的无量纲距离 $L_{min}^* = L_{min} / R_i$ (即颈部长度)以及液滴端部与内毛细管出口之间的无量纲距离 $L_h^* = L_h / R_i$ (即液滴端部长度),用于定量描述过程中相界面行为的动态演化(见图1).同时,通过监测内、外相流体入口处平均压力 p_i 和 p_o 来定量表征过程中压力的实时变化。

3.1 无电场作用下乳液液滴乳化成

充分认识无电场作用下乳液液滴乳化成过程是揭示电场对该过程调控机理的基础.为此,图5展示了无电场作用下 $Ca = 0.075$ 时协流式微流控装置中乳液液滴乳化成全过程的相界面行为、压力场及流场的非稳态演化.如图所示,液滴乳化成过程呈现出滴式流型,其可分为两个阶段,即生长阶段和分离阶段.在生长阶段,内相流体通道出口处形成一个半球状端部(图5(a)-(i)),并随着内相流体的持续注入而长大为“梨形”(图5(a)-(ii)).同时,在外相流体的黏性拖曳作用下,“梨形”端部不断向下游移动.在该阶段中,内相流体颈部半径最小处始终位于其通道出口处(即颈部半径最小处到通道出口的距离为0,图5(b)),并且颈部最小半径始终与通道出口处半径相等(图5(b)).随着“梨形”端部体积的增长,其界面平均曲率半径逐渐增大,使得端部界面张力引起的内、外相间的Laplace压差不断减小.因此,在外相压力变化不大的情况下,“梨形”端部内的压力随之降低,进而造成内相流体入口处平均压力 p_i 降低(图5(b)).此外,“梨形”端部的长大导致外相流体对其产生的

黏性拖曳力增大,造成作用于外相流体的反作用力也同步增强.该反作用力施力总方向与外相流体流动方向相反,可视为外相流体的一种流动阻力,故其增大可引起外相流体上游入口处平均压力 p_o 的升高(图5(b)).同时,我们注意到,在生长阶段早期,液滴端部长度变化出现了起伏,导致内外相流体入口压力产生波动.但液滴端部长度起伏变化很小,因此,压力波动范围也较小,不超过2 Pa(图5(b)).生长阶段完成后,液滴生成过程即进入分离阶段(图5(a)-(iii)),内相流体颈部半径开始快速减小,颈缩现象凸显,同时颈部位置向下游加速移动(图5(b)).随着颈缩过程的不断推进,内相流体颈部逐渐缩小成一条短液线(图5(a)-(iv)),液线周向很小的界面曲率半径产生了明显的Laplace压差,引起其内部出现了局部高压(见图5(a)-(a-1)).该高压驱动液线中的内相流体向两侧快速排出,从

而在上游与内相流体来流相互撞击而形成了对称涡流(图5(a)-(iv)),并促进了液线的快速夹断,液滴随之生成.值得注意的是,颈缩过程中,颈部上游内毛细管出口处内相流体界面逐渐回缩,其平均曲率半径随之减小,造成内、外相间的Laplace压差不断升高,从而再次引起内相流体入口处平均压力 p_i 增大(图5(b)).另外,由图5(b)可知,与生长阶段相比,分离阶段颈缩过程中的界面张力辅助颈部内相流体排液加快了“梨形”端部向下游的移动速度,缩小了外相流体与“梨形”端部间的速度差异,从而使得外相流体对端部产生的黏性拖曳力及其反作用力减小,外相流体上游入口处平均压力 p_o 随之降低(图5(b)).随着液滴的生成,内相流体端部在表面张力的作用下回缩并恢复半球形,乳液液滴乳化生成过程进入下一个周期(图5(a)-(v)).

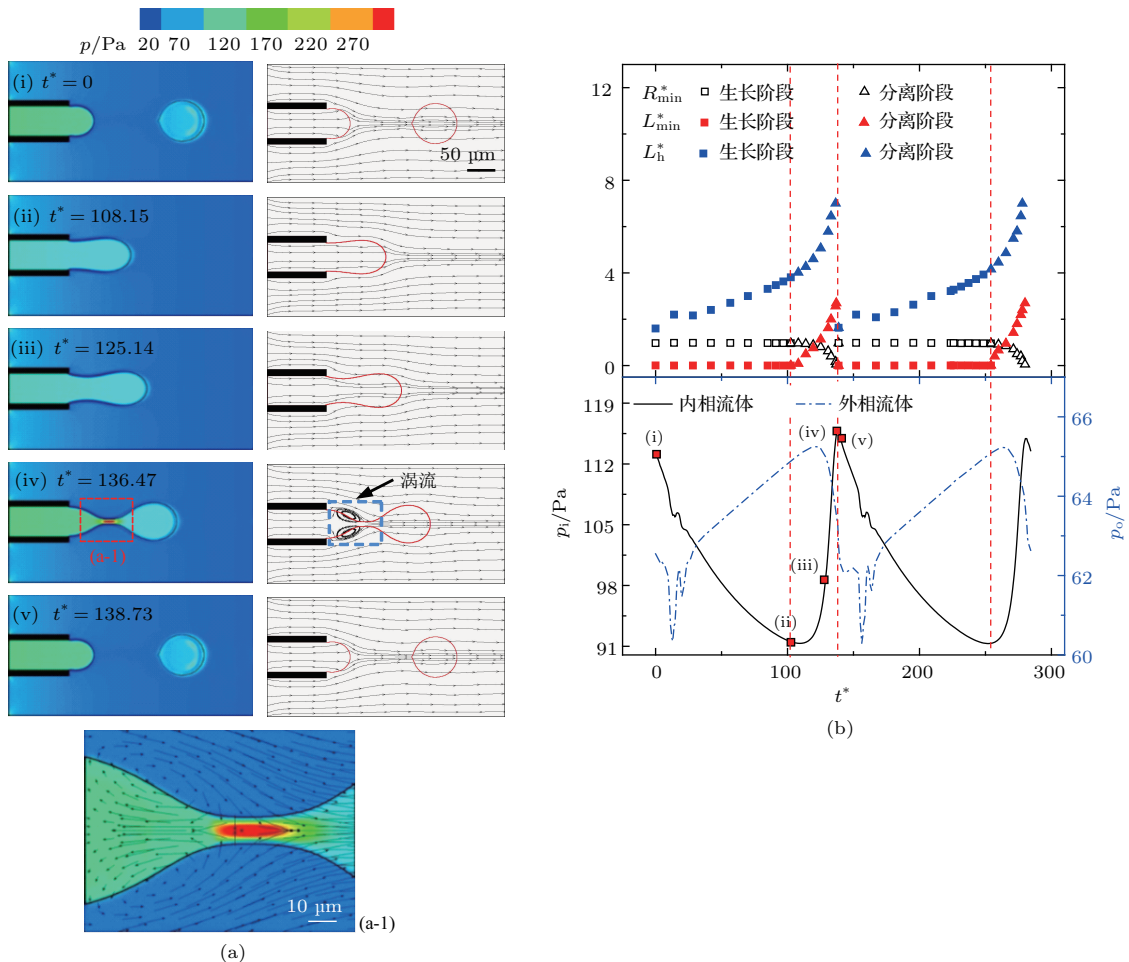


图5 无电场作用下乳液液滴乳化生成过程 ($Ca = 0.075$) (a) 液滴生成过程中相界面形貌压力场与流场演化; (b) 液滴生成过程中颈部最小半径颈部长度和液滴端部长度及内外相流体入口压力的实时变化

Fig. 5. Droplet formation process without control of electric field ($Ca = 0.075$): (a) Evolutions of interface profile, pressure field and flow field during the droplet formation; (b) evolutions of minimum neck radius, neck length, and droplet head length as well as pressures of inner and outer fluid inlets.

3.2 电场作用下乳液液滴乳化成

如图6所示, 在外相流体入口处施加恒定电压并将流体出口处接地后, 便在两相流体区域产生了

关于协流式微流控乳化装置中心轴对称的电场, 并且其电势由流体入口处向下游逐渐减小. 特别是, 依据麦克斯韦静电力学理论^[38], 由于本研究中内相流体的相对介电常数小于外相流体, 于是在两

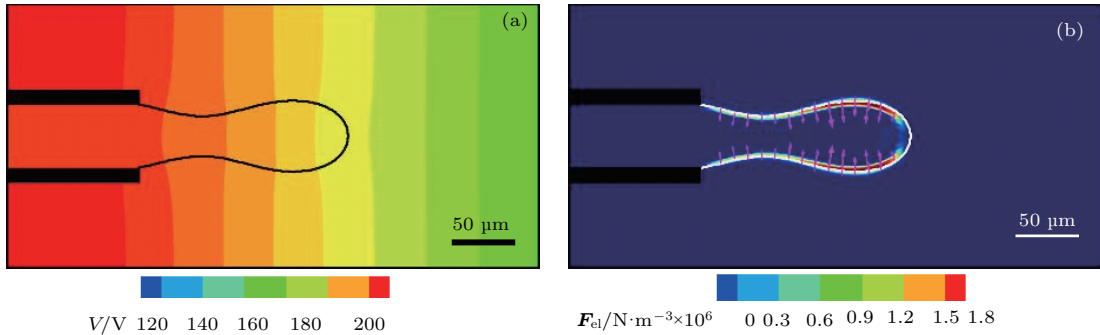


图6 乳液液滴乳化成过程中局部电势及两相界面处电场力模拟结果 ($Ca = 0.075, Ca_E = 0.35, t^* = 120$) (a) 电势云图; (b) 两相界面处电场力, 紫色箭头为电场力矢量

Fig. 6. Simulation results of local electric potential and electric field force on interface during the droplet formation process ($Ca = 0.075, Ca_E = 0.35, t^* = 120$): (a) Contour of electric potential; (b) electric field force on interface, where the purple arrow indicate electric force vectors.

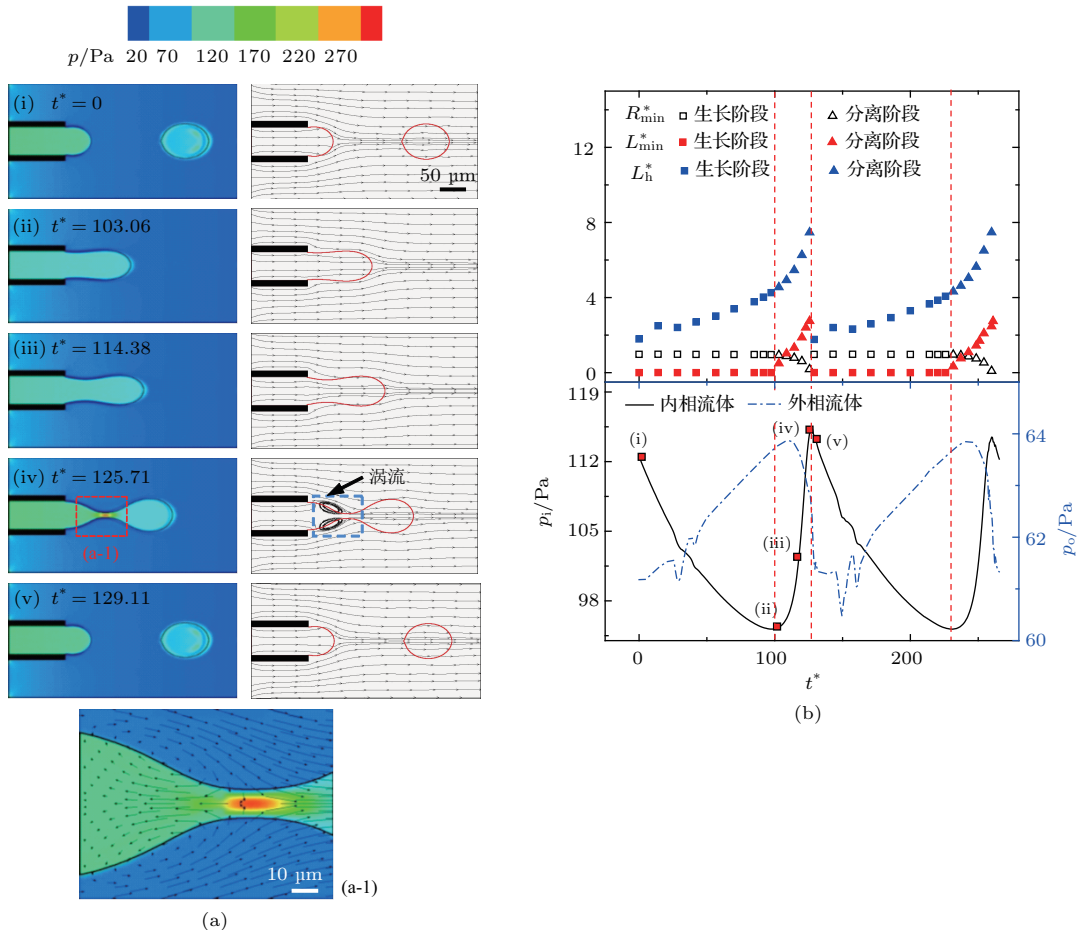


图7 电场作用下乳液液滴乳化成过程 ($Ca = 0.075, Ca_E = 0.35$) (a) 液滴生成过程中相界面形貌、压力场与流场演化; (b) 液滴生成过程中颈部最小半径、颈部长度和液滴头部长度及内、外相流体入口压力的实时变化

Fig. 7. Droplet formation process under control of electric field ($Ca = 0.075, Ca_E = 0.35$): (a) Evolutions of the shape of phase interface profile, pressure field and evolution of flow field during the process of droplet formation; (b) evolutions of minimum neck radius, neck length and droplet head length as well as pressures of inner and outer fluid inlets.

相流体界面的法线方向上便产生了指向内相流体的电场力. 在电场力的作用下, 乳液液滴乳化成过程中两相界面的动态演化行为将发生改变, 进而影响到液滴乳化成流型的产生与演化以及液滴尺寸、形状、生成速率等品质参数.

为此, 图7与图8展示了在如图5所示工况基础上引入不同强度电场调控后, 协流式微流控乳化成装置中乳液液滴乳化成全过程的相界面行为、压力场及流场的非稳态演化. 由图7可知, 当电场强度较小时 ($Ca_E = 0.35$), 液滴生成过程依然呈现出滴式流型, 但由于受到如图6(b)所示的电场力挤压作用, 整个生成过程中内相流体界面在垂直于装置中轴线的方向上被压扁, 生长阶段和分离阶段的半球状端部及“梨形”端部全部转变为椭球形(图7(a)). 特别是, 在分离阶段, 电场力的挤压作用

强化了颈缩过程, 并进一步促进颈部液线处内相流体向两侧排液, 从而造成液线上游产生的涡流也较无电场作用时更为明显(图7(a)-(iv)). 同时, 在电场力作用下, 乳化成生成的液滴也呈现出椭球状形貌(图7(a)-(v)). 总的来看, 电场的引入加速了乳液液滴的乳化成.

随着电场强度的提升, 两相流体界面处电场力向中心轴线的挤压作用更加明显, 乳液液滴乳化成流型产生了新的变化, 如图8所示 ($Ca_E = 1.08$). 由图可知, 电场力挤压作用增强, 使液滴乳化成过程中内相流体界面被压得更扁, 颈缩过程被进一步强化. 尤其是由于受到电场力的持续挤压, 在分离阶段后期, 内相流体颈部区域形成一条细长液线, 并且颈部区域上游出现明显的内相流体回缩(图8(a)-(iii)). 随着液线持续变细, 其表面因

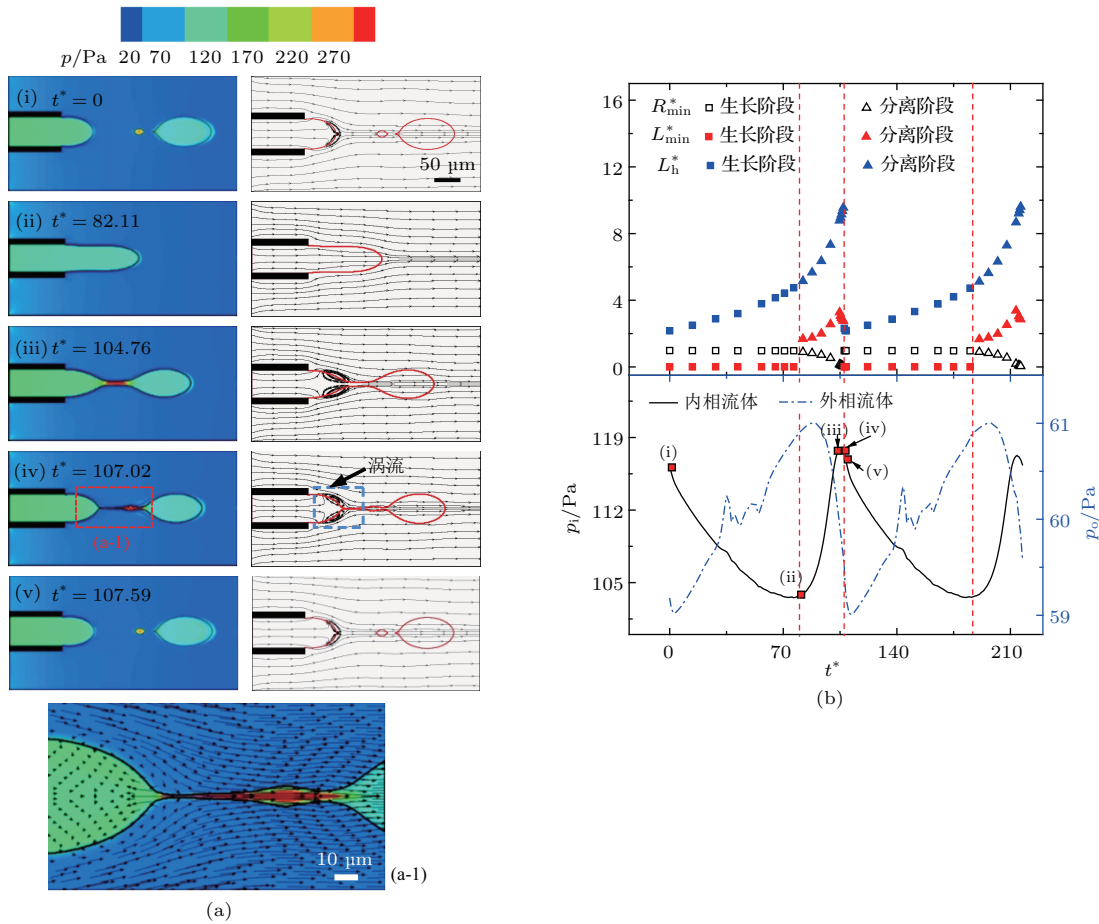


图8 电场作用下乳液液滴乳化成过程 ($Ca = 0.075$, $Ca_E = 1.08$) (a) 液滴生成过程中相界面形貌、压力场与流场演化; (b) 液滴生成过程中颈部最小半径、颈部长度和液滴端部长度及内、外相流体入口压力的实时变化

Fig. 8. Droplet formation process under control of electric field ($Ca = 0.075$, $Ca_E = 1.08$): (a) Evolutions of the shape of phase interface profile, pressure field and evolution of flow field during the process of droplet formation; (b) evolutions of minimum neck radius, neck length and droplet head length as well as pressures of inner and outer fluid inlets.

Rayleigh-Plateau 不稳定性而产生波动, 随之液线和上游内相流体主体部分分离(图 8(a)-(iv)), 而后又与下游主液滴之间再次分离, 继而生成一个跟随主液滴向下游流动的卫星液滴, 内相流体继续回缩至内毛细管出口处, 由此液滴生成进入下一周期(图 8(a)-(v)). 与 $Ca_E = 0.35$ 工况相比, 电场强度的提升使得液滴乳化生成周期进一步缩短, 生成液滴的形变程度提高.

3.3 电场对乳液液滴乳化生成特性的影响

为了阐明电场对乳液液滴乳化生成品质的影响规律, 本研究数值模拟并统计获得了不同 Ca 数和 Ca_E 数组合工况下, 准稳定乳化阶段液滴生成的平均尺寸及平均变形率(卫星液滴不纳入统计), 如图 9 所示. 可以看出, 在 Ca 数不变的情况下, 随着 Ca_E 数的增大, 生成液滴的尺寸减小, 变形率增大. 由前述分析可知, 这是由于电场力的增大, 强化了内相流体界面沿中轴线方向向内的挤压作用, 使其颈缩和断裂进程加快, 进而提升了液滴生成速率. 这样, 根据质量守恒定律, 在内相流体流量保持不变的情况下, 液滴尺寸随生成速率的增大而减小. 再者, 由于受到界面处电场力的挤压, 生成液滴的形貌也由近似球形转变为椭球形, 变形率增大. 另外, 从图 9 中还可以看到, 在同一 Ca_E 数下, 即界面处电场力一定时, 随着 Ca 数的增加, 液滴乳化生成过程中所受到的黏性拖曳力增强, 促进了内相流体界面的颈缩和断裂, 从而使生成液滴的尺寸减小, 进而导致液滴表面的 Laplace 压差力作用增强, 液滴形变受到抑制, 液滴变形率降低.

由前述分析可知, 电场力的引入改变了常规协流式微流控装置中液滴乳化生成时相界面的动态演化行为, 进而使液滴乳化生成流型产生了新的变化, 即出现了伴随有卫星液滴生成的滴式流型. 并且, 该流型的产生与液滴乳化生成过程中黏性力、表面张力及电场力间的相互竞争密切相关. 为此, 采用 Ca 数和 Ca_E 数定量表征黏性力、表面张力及电场力间的竞争关系, 并基于本文的数值模拟研究结果, 图 10 绘制了液滴乳化生成流型图. 从图中可以看出, 无卫星液滴生成的滴式流型通常出现在低 Ca 数和低 Ca_E 数区域, 而伴随有卫星液滴生成的滴式流型则出现在 Ca 数和 Ca_E 数较高时. 如前所述, 这主要是由于随着 Ca 数和 Ca_E 数的增大, 黏性拖曳力以及电场力作用增强, 使内相流体颈缩过

程后期更容易形成细长型液线, 从而有助于诱发液线上产生 Rayleigh-Plateau 不稳定现象, 继而促进卫星液滴的形成.

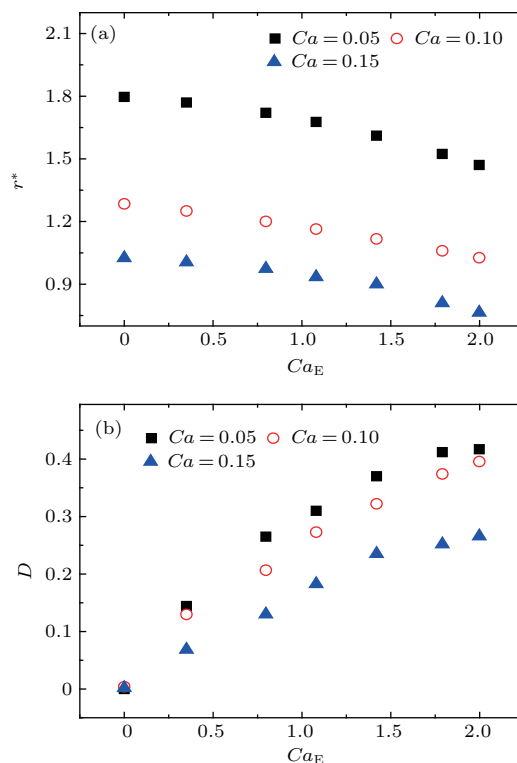


图 9 不同 Ca 下液滴乳化成品质随 Ca_E 的变化 (a) 无量纲液滴半径; (b) 液滴变形率

Fig. 9. Droplet formation qualities as a function of Ca_E under different Ca : (a) Dimensionless droplet radius; (b) droplet deformation degree.

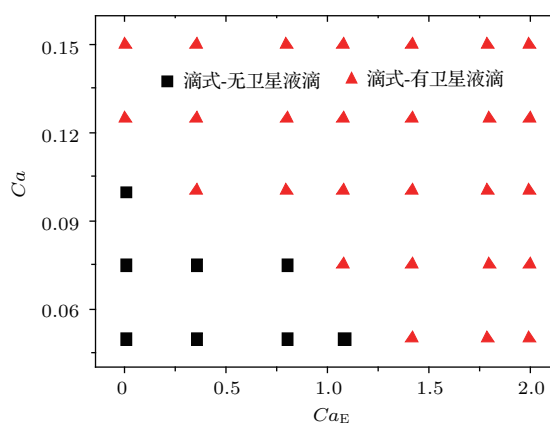


图 10 电场作用下乳液液滴乳化生成流型图

Fig. 10. Diagram of droplet formation regimes under control of electric field.

4 结 论

本文采用基于 Cahn-Hilliard 方程的相场方法捕捉液-液两相流体界面, 并利用静电模型表征电

场力作用, 通过电场与多相流体流场控制方程的双向耦合, 建立了协流式微流控装置中不可压缩单乳液液滴乳化生成过程的非稳态理论模型. 基于该理论模型, 本文数值模拟研究了电场对乳液液滴乳化生成动力学行为的调控机理, 揭示了流场/电场参数对液滴乳化生成特性的影响规律. 研究结果表明: 1) 沿流体流动方向施加负电势梯度的静电场, 可在液滴乳化生成过程的两相流体界面法线方向上产生指向内相流体的电场力, 且该电场力强化了内相流体界面的颈缩和断裂行为, 提升了液滴生成速率和形变程度, 减小了液滴生成尺寸; 2) 在同一 Ca 数下, 随着 Ca_E 数的增大, 乳液乳化流型由每周期仅有单一液滴生成的滴式流型转变为每周期有一个主液滴并伴随有卫星液滴生成的滴式流型; 3) 基于 Ca 数和 Ca_E 数绘制的流型图可定量表征黏性力、表面张力及电场力作用对乳化流型的影响, 其表明随着 Ca 数和 Ca_E 数的增大, 黏性拖曳力以及电场力作用增强, 使内相流体颈缩过程后期更容易形成细长型液线, 从而有助于诱发液线上产生 Rayleigh-Plateau 不稳定现象, 继而促进卫星液滴的形成.

本文的模拟工作揭示了直流电场对协流式微流控装置中单乳液液滴乳化生成过程的作用机理, 阐明了电场强度、流动参数等对液滴乳化生成尺寸、速率及形变率的调控规律. 这不仅为更加深入地认识外场操控下液-液多相流及相界面演化行为提供了重要素材, 而且为工程实际中电场调控单乳液液滴微流控乳化制备工艺参数的选择提供了理论指导.

参考文献

- [1] McClements D J, Li Y 2010 *Adv. Colloid Interface Sci.* **159** 213
- [2] Wan J 2012 *Polymers* **4** 1084
- [3] Sander J S, Erb R M, Denier C, Studart A R 2012 *Adv. Mater.* **24** 2582
- [4] Lee D, Weitz D A 2008 *Adv. Mater.* **20** 3498
- [5] Liang H, Chai Z H, Shi B C 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 204701 (in Chinese) [梁宏, 柴振华, 施保昌 2016 物理学报 **65** 204701]
- [6] Chen Y P, Shen C Q, Peterson G P 2015 *Ind. Eng. Chem. Res.* **54** 9257
- [7] Chen Y P, Deng Z L 2017 *J. Fluid Mech.* **819** 401
- [8] Wu L Y, Liu X D, Zhao Y J, Chen Y P 2017 *Chem. Eng. Sci.* **163** 56
- [9] Liu X D, Wang C Y, Zhao Y J, Chen Y P 2018 *Int. J. Heat Mass Transfer* **121** 377
- [10] Liu X D, Chen Y P 2013 *Appl. Therm. Eng.* **58** 585
- [11] Utada A S, Fernandez-Nieves A, Stone H A, Weitz D A 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 094502
- [12] Freiberg S, Zhu X X 2004 *Int. J. Pharm.* **282** 1
- [13] Baret J C, Miller O J, Taly V, Ryckelynck M, El-Harrak A, Frenz L, Rick C, Samuels M L, Hutchison J B, Agresti J J, Link D R, Weitz D A, Griffiths A D 2009 *Lab on Chip* **9** 1850
- [14] Chen Q, Qi X B, Chen S F, Liu M F, Pan D W, Li B, Zhang Z W 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 046801 (in Chinese) [陈强, 漆小波, 陈素芬, 刘梅芳, 潘大伟, 李波, 张占文 2017 物理学报 **66** 046801]
- [15] Liu X, Chen Y, Shi M 2013 *Int. J. Therm. Sci.* **65** 224
- [16] Wu J, Shi M, Chen Y, Li X 2010 *Int. J. Therm. Sci.* **49** 922
- [17] Chen Y P, Liu X D, Shi M H 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 051609
- [18] Chen Y P, Liu X D, Zhao Y J 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 141601
- [19] Chen Y P, Wu L Y, Zhang L 2015 *Int. J. Heat Mass Transfer* **82** 42
- [20] Mohseni K, Dolatabadi A 2006 *Ann. N. Y. Acad. Sci.* **1077** 415
- [21] Zagnoni M, Cooper J M 2009 *Lab on Chip* **9** 2652
- [22] Hohman M M, Shin M, Rutledge G, Brenner M P 2001 *Phys. Fluids* **13** 2201
- [23] Hohman M M, Shin M, Rutledge G, Brenner M P 2001 *Phys. Fluids* **13** 2221
- [24] Zhai S L, Luo G S, Liu J G 2001 *Chem. Eng. J.* **83** 55
- [25] Luo G S, Jiang W B, Lu Y C, Zhu S L, Dai Y Y 1999 *Chem. Eng. J.* **73** 137
- [26] Zhang X, Basaran O A 1996 *J. Fluid Mech.* **326** 239
- [27] Kim H, Luo D, Link D, Weitz D A, Marquez M, Cheng Z 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 133106
- [28] Tan S H, Semin B, Baret J C 2014 *Lab on Chip* **14** 1099
- [29] Wang X X, Ju X J, Sun S X, Xie R, Wang W, Liu Z, Chu L Y 2015 *RSC Adv.* **5** 34243
- [30] Ju X, Wang X, Liu Z, Xie R, Wang W, Chu L Y 2017 *Particuology* **30** 151
- [31] Notz P K, Basaran O A 1999 *J. Colloid Interface Sci.* **213** 218
- [32] Li Y, Jain M, Ma Y, Nandakumar K 2015 *Soft Matter* **11** 3884
- [33] Gong S, Cheng P, Quan X 2010 *Int. J. Heat Mass Transfer* **53** 5863
- [34] Wehking J D, Chew L, Kumar R 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 054101
- [35] Liu X D, Wang C Y, Zhao Y J, Chen Y P 2018 *Chem. Eng. Sci.* **183** 215
- [36] Nie Z, Seo M S, Xu S, Lewis P C, Mok M, Kumacheva E, Whitesides G M, Garstecki P, Stone H A 2008 *Microfluid. Nanofluid.* **5** 585
- [37] O'Konski C T, Jr H C T 1953 *J. Phys. Chem.* **57** 955
- [38] Tomar G, Gerlach D, Biswas G, Alleborn N, Sharma A, Durst F, Welch S W J, Delgado A 2007 *J. Comput. Phys.* **227** 1267

Mechanism for regulation and control of emulsion droplet generation in co-flow microfluidic device via electric field*

Li Lei Zhang Cheng-Bin[†]

(Key Laboratory of Energy Thermal Conversion and Control, Ministry of Education, School of Energy and Environment, Southeast University, Nanjing 210096, China)

(Received 8 April 2018; revised manuscript received 20 May 2018)

Abstract

Applying the active control of electric field to the preparation of micro-droplets via the traditional microfluidic technology has attracted great attention because it can effectively improve the controllability of the preparing process. Therefore, a full understanding of mechanism for the regulation and control of microdroplets's generation by the microfluidic technology and electric field will provide interesting possibilities for the active control of producing required microdroplets in the practical applications. A transient theoretical model is developed via the coupling of phase-field method and electrostatic model to numerically investigate the generation of the single-phase droplets in a co-flow microfluidic device under the control of a uniform direct-current electric field. Via the numerical simulations based on the transient model, the control mechanisms of the electric field on dynamic behaviors of the droplets generation are revealed, and the influences of flow and electric parameters on the droplets generation characteristics are elucidated. The results indicate that the electrostatic field is able to generate an electric field force toward the inner phase fluid in the normal direction of the interface between two-phase fluids with different electric parameters. The electric field force enhances the necking and breaking of the inner fluid interface, which accelerates the droplets' generation, increases droplet deformation degree, and reduces droplet size. As the electric capillary number increases under the same hydrodynamic capillary number, the droplet formation pattern is transformed from dripping regime with only a single droplet formed per cycle to another dripping regime with one main droplet formed together with the following satellite droplets per cycle. In addition, according to the numerical results in this work, we organize a regime diagram to quantitatively represent the respective regime of these two flow patterns as a function of hydrodynamic capillary number and electric capillary number. The regime diagram indicates that with the increase in hydrodynamic capillary number and electric capillary number, the viscous drag force and electric field force are strengthened, which induces the formation of a slender liquid thread of inner fluid at the later stage of the necking process. This contributes to triggering the Rayleigh-Plateau instability on the liquid thread of inner fluid, and thus facilitating the generation of satellite droplets via the breakup of the liquid thread.

Keywords: microfluidics, droplets, emulsification and generation, electric control

PACS: 68.03.Cd, 68.05.-n, 85.85.+j

DOI: 10.7498/aps.67.20180616

* Project supported by the Joint Fund of the National Natural Science Foundation of China and the China Academy of Engineering Physics (Grant No. U1530260), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51776037), and the Natural Science Foundation of Jiangsu Province, China (Grant No. BK20170082).

[†] Corresponding author. E-mail: cbzhang@seu.edu.cn