



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE
ÉCOLE DOCTORALE : RP2E
Laboratoire Réactions et Génie des Procédés

THÈSE

Présentée et soutenue publiquement le 24/06/2010
pour l'obtention du grade de Docteur de l'INPL
(Spécialité : Génie des Procédés et des Produits)

par

Taotao FU

Écoulements gaz-liquide et comportement des bulles en microcanaux

Directeur de thèse :	Huai Zhi LI	Professeur à l'ENSIC-INPL, Nancy, France
Co-directeur de thèse :	Youguang MA	Professeur à Tianjin University, China
Co-directeur de thèse :	D. FUNFSCHILLING	Chargé de recherche au CNRS, France

Composition du jury :

<i>Président du jury :</i>	Chunli LI	Prof. à Hebei University of Technology, China
<i>Rapporteurs :</i>	Chunli LI	Prof. à Hebei University of Technology, China
	Zeting ZHANG	Prof. à Beijing Univ. of Chem. Tech., China
<i>Examineurs :</i>	D. FUNFSCHILLING	Chargé de recherche au CNRS, France
	P. LEGENTILHOMME	Prof. à l'Université de Nantes, France
	Huai Zhi LI	Professeur à l'ENSIC-INPL, Nancy, France
	Youguang MA	Professeur à Tianjin University, China
<i>Membre invité :</i>	Haihua SONG	Professeur à Tianjin University, China

Study of gas-liquid two-phase flow and bubble behaviors in microchannels

Preface

Since 1990's, the development of miniaturization is an important trend of the natural sciences and engineering technology. With the putting forward and development of the concepts of micro total analysis system (μ -TAS), micro electro mechanical systems (MEMS), microfluidics, microsystem, lab on a chip, etc., micro-chemical technology becomes one of the new developmental orientations for the chemical engineering science. Over the last decade, the studies on micro-chemical technology, including micro-emulsification, micro-mixer, micro-heating, micro-reaction, micro-separation, micro-analysis system, etc., have been in a rapid development trend. International Conferences on the themes of "micro-reaction technology (1997)", "microchannel and minichannel (International conference on microchannels and minichannels, 2003)", "Microfluidics (1 st European conference on microfluidics, 2008)", etc., have been held. Research units in Germany, the United States, Japan, France, the Netherlands, the United Kingdom and China and other countries, have carried out a large number of investigations on micro-chemical technology and have achieved certain results. For example, IMM, DUPONT, PNNL, BASF and other companies have launched some micro-chemical-related researches.

Currently, for the applications of microfluidics, it is still relatively limited to achieve large-scale industrial production technology, within which, the inkjet printer technology is the most familiar one. Small-scale production technology, including the screening of protein crystallization conditions, high-capacity screening of drug development, as well as single molecules or cells in experiments and analysis, and so on. Microfluidic chips have been used in many functional elements: micro-valves, micro pumps, micro excitation, micro switch, micro sensors, micro-deconcentrator, micro mixer, micro-filter, micro-separation device, micro heater, etc..

Microfluidics is the basis of micro-chemical technology. Microfluidics is also a very cutting-edge field of investigation. The multiphase flow is the foundation for the investigation and application (mixing, reaction, emulsification, crystallization and

mass transfer) for microfluidics technology. The most common multiphase flow is liquid-liquid or gas-liquid two-phase flow. The characteristics for the flow patterns of the gas-liquid or liquid-liquid two-phase flows in microchannels are different from those in conventional scales. The most notable one is that stratified flow does not occur in a large number of applications for gas-liquid two-phase flow in microchannels; the flow patterns could not predict by the traditional criteria for the flow patterns of gas-liquid or liquid-liquid two-phase flows; the transitions for different flow patterns are influenced by the liquid and gas medium, micro-channel dimensions, flow rates of both phases, contact mode for both phases, the properties of the walls of microchannels and the flow direction, etc.. It is still at the experimental stage for the investigation of flow patterns for gas-liquid or liquid-liquid two phase flows in microchannels, and it needs further investigation for the transition mechanism for flow patterns and a universal criterion for transitions of flow patterns for gas-liquid or liquid-liquid two phase flows.

Bubbles and droplets are important research contents in microfluidics. In the study of mass transfer enhancement, the vortex in liquid slug is one of the reasons to enhance mass transfer. Slug flow can also be used to enhance the mixing effect, and to reduce dispersion. The advantages of well controllability and potential applications for slug flows for gas-liquid or liquid-liquid flows in microchannels, have attracted some researchers. The investigation on the mechanism of bubble or droplet formation and the flow characteristics for bubbles and drops can enrich the theoretical basis of microfluidics and could provide new guidance for the development and application of microfluidics. In general, the common bubble or droplet generators can be divided into three categories (Figure 1): T-typed micro-channel by cross-flowing rupture technology (Figure 1a): the dispersed phase is usually introduced by the vertical bypass pipe, and the continuous phase is introduced by the main channel, and flow away from the main channel downstream; T-type or Y-type micro-channel devices with head-on contact method (Figure 1b-c): the dispersed and continuous phases are usually introduced by both side channels and flow out from the main channel downstream; microfluidic flow-focusing devices (Figure 1d): the dispersed phase usually introduced by the middle channel, and the continuous phase by the two flow-focusing side channels, and the mixed fluids flow away from the main channel downstream.

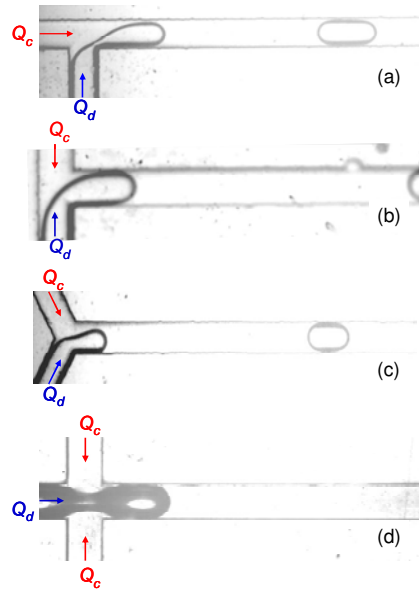


Fig. 1 Three popular microfluidic generators for bubbles or droplets: (a) cross-flowing T-junction; (b)-(c) head-on T- or Y-junctions; (d) flow-focusing devices

It is the most common way to generate bubbles or droplets by cross-flowing method: the dispersed phase is contacted and ruptured by the cross-flowing continuous phase (Figure 1a). Recently, some authors classified the formation mechanism of bubbles or droplets into three main types.

1). The confined breakup mechanism: the formed thread of the dispersed phase blocks the outlet channel and develops in the channel, during which, it is confined by both the shape and size of the channel. In this stage, the developing thread of the dispersed phase obstructs the continuous phase, and the continuous phase can only pass along the film between the thread of the dispersed phase and the channel wall. The obstruction increases the pressure in the upstream continuous phase of the thread. The increased pressure drives the interface of the two-phase downstream, ultimately collapses and pinches-off the thread and generates bubbles or droplets. So this kind of pressure is also called pinching or squeezing pressure. The regime of the confined breakup mechanism is called squeezing regime and usually occurs at quite low capillary number. The size of formed bubbles or droplets is controlled by the ratio between dispersed and continuous flow rates and usually quite longer than the channel width.

2). The unconfined breakup mechanism: the formed thread of the dispersed phase does not touch the wall of the channel, in the entire process of the bubble or droplet formation. The sizes of formed bubbles or droplets are mainly controlled by

the local shear around the thread and usually smaller than the channel width. The regime for the unconfined breakup mechanism is called dripping regime. The channel for the continuous phase is usually quite wider than that for the dispersed one. Unless the size of droplet is much smaller than the channel width, the additional force (pinching or squeezing pressure) plays a role on the formation process of the droplets in the dripping regime, which makes the modeling of droplet formation even more difficult.

3). The partly-confined breakup mechanism: the thread of the dispersed phase is partly confined by the channel, and the breakup is controlled simultaneously by the squeezing pressure and shear rate. The regime for the partly-confined breakup is between the squeezing and dripping ones, and called transition regime. The bubble or droplet size is controlled by both the flow rate ratio of both phases and the capillary number. Usually, it is not easy to model the bubble or droplet formation in this regime due to the coupling effects arising from several parameters. The final size of the droplet is determined by the capillary and the flow rate ratio of both phases, and is also affected by the configuration of the microfluidic device.

The typical configurations for microfluidic flow-focusing devices could be classified into three types (Figure 2): (I) Capillary flow-focusing device, the gas streams by the co-flowing liquid phase; (II) The flow-focusing junction aligned to a small and short orifice, linked to a wide exit; (III) The gas and liquid inlet channels and the outlet channel have the same straight geometry. The flow rates of both phases play an important role on the bubble formation process in all of these devices, whereas, the scaling law is different for different type of geometry.

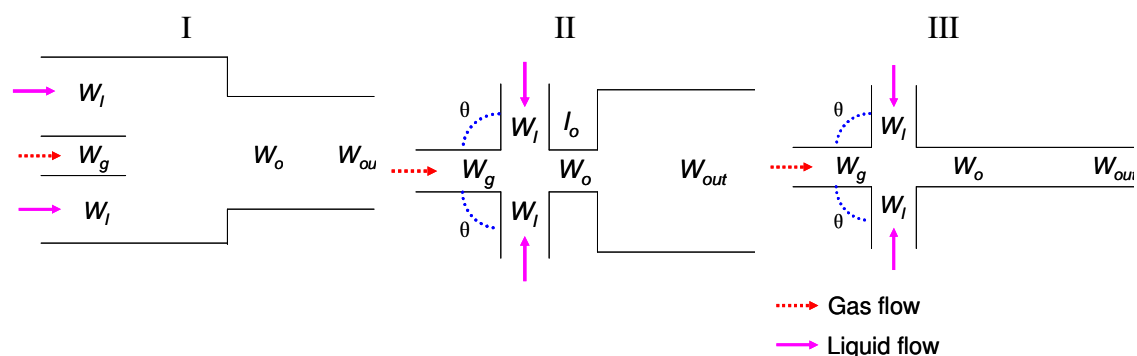


Fig. 2 Three typical microfluidic flow-focusing devices

In the more complex microchannels, the flow behaviors of the bubbles or drops

are often changed, such as the happen of coalescence, fragmentation, and collisions, etc. for bubbles or drops. In microchannels, the capillary number is small. Therefore, shear forces will deform the interface of two phases, which makes the complexity of the flow behaviors. In this situation, the flow behaviors are controlled by the capillary number, the degree of confinement of microchannels and the physical properties of fluids.

In recent years, the application of micro-Particle Image Velocimetry (micro-PIV) technique on microfluidics has been attracted more and more attentions. But it still needs further investigation on the application of micro-Particle Image Velocimetry (micro-PIV) technology on the formation and movement of drops and bubbles in microchannels.

In this thesis, the flow patterns for gas-liquid two phase flow and the behaviors of bubbles in microchannels were observed and recorded in real-time by using a high speed camera; the velocity distributions in the liquid phase during the formation and movement of bubbles in microchannels were measured by using a micro-Particle Image Velocimetry (micro-PIV) in real-time. The characteristics for gas-liquid two phase flow and the mechanism for bubble formation in various types of microchannels were investigated. The characteristics for gas-liquid two-phase flow in vertical rectangular microchannels were studied. The influences of the properties of the continuous phase (viscosity, surface tension, rheological properties of the liquid phase) on the bubble formation process were investigated. The coalescence and fragmentation behaviors for bubbles in complex microchannels were also studied.

Experimental apparatus and procedure

Photolithographic and wet chemical etching techniques were used for fabricating microchannels onto a 1.6 mm thick 30×60 mm glass plate with chromium and photoresist coating (AZ1805, China). The design of the microchannel was transferred onto the glass plate following an UV exposure using a model JKG-2A photolithographic equipment (Photomechanical Co., China). The channels were etched into the plate in a well stirred, dilute HF/NH₄F bath with an etching time of 15 min. Three 2 mm diameter access holes were drilled on the etched plate at channel terminals using a diamond tipped drill bit. The T-shaped channel dimensions were 40 μm deep and 120 μm (160, 240 μm) wide, with two 10 mm long side channels and a

40 mm long main channel. An identical sized blank glass plate was used as cover plate. The etched and cover plate were then bonded at room temperature. Polytetrafluoroethylene (PTFE) tubes were affixed with epoxy on the etched plate, surrounding the access holes. In this thesis, T240, T160 and T120, refer to cross section (depth \times width) of microchannels with respectively $40 \times 240 \mu\text{m}$ (T240), $40 \times 160 \mu\text{m}$ (T160) (Figure 3a), $40 \times 120 \mu\text{m}$ (T120).

The flow-focusing microchannels and complex microchannels were prepared in polymethyl methacrylate (PMMA). The microfluidic device was fabricated in a plate ($45 \times 27.5 \times 2 \text{ mm}$) of polymethyl methacrylate (PMMA) by precision milling and sealed with another thin PMMA plate. The square sections were $600 \mu\text{m}$ wide \times $600 \mu\text{m}$ deep and $400 \mu\text{m}$ wide \times $400 \mu\text{m}$ deep, respectively. Stainless steel tubes ($d_i = 1\text{mm}$) were used to connect the inlets and outlet of the microchannel to tygon tubes (ID = 1.02mm), which were employed to connect the microchannel device with gas and liquid supplies.

In this thesis, +400 and +600 represent the cross section of microchannels with $400 \times 400 \mu\text{m}$ and $600 \times 600 \mu\text{m}$, respectively. E400 means the microchannels with a sudden expansion section, with the thickness of $400 \mu\text{m}$, and the cross section of the main channel with $400 \times 400 \mu\text{m}$; D1 represents the microchannel with a symmetric loop and a bended section (Figure 3b).

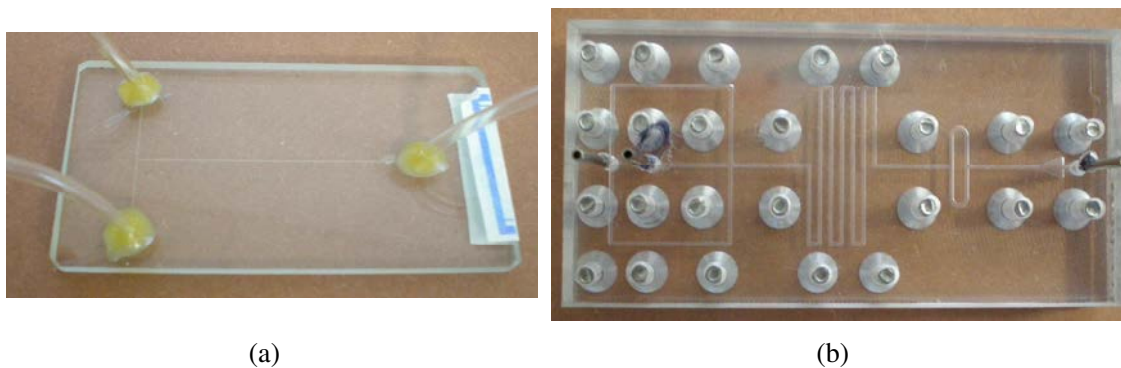


Fig. 3 Photos of (a) T-junction, $40 \times 160 \mu\text{m}$ (T160); (b) D1 ($400 \mu\text{m} \times 400 \mu\text{m}$);

A home-made laser image measurement system was applied for the visualization of the patterns for gas-liquid two phase flow in vertical microchannels. The amplified images of the flow patterns on the frosted glass, produced by shadow display of a He-Ne laser and amplified by an amplifying lens ($f=4.5\text{cm}$), were captured by a CCD camera (25 fps). For every condition, at least 100 images were captured. The flow

patterns and liquid film thickness under different conditions were analyzed from images. After changing any of the flow parameters, At least 200 s of equilibration time was allowed.

The experimental setups for the generation and flow characteristics of bubbles and droplets consist of fluid control system and image acquisition system.

Gas was supplied by a N₂ cylinder to a tank equipped with a pressure gauge that was used to stabilize the pressure. The gas flow rate was controlled by a high precision micrometering valve (Sagana Instrumentaion, Luxembourg). Liquid was delivered from a 60 mL syringe by a syringe pump (Harvard Apparatus, USA). The gas and liquid streams, introduced from the main channel and the side channel respectively, meet at the crossing (Fig. 2a), which is located 10 mm downstream of the inlets. For each flow rate, the system was run for at least 200 s to reach a steady state, verified through the bubble formation frequency and the bubble size by means of the camera visualization.

A high speed camera CamRecord600 (Optronis GMBH, Germany) used with a microscopic magnification lens (1.5×) mounted on an extension tube was set above the channel. The minimum shutter speed is 1/1000000 s. In this work, the frame rate of 2000 fps and shutter speed of 1/50000 s were used. The resolution of the camera was 1280(H) × 256(V) pixels. A cold fiber light (Jeulim S.A., France), placing at the other side of the channel, was provided to illuminate the channel. A Matlab program was applied to quantify bubbles' features on the basis of pixels.

All the experiments are at room temperature and atmospheric conditions.

A micro Particle Image Velocimetry system (micro-PIV) (Dantec Dynamics, Denmark) was used by seeding the carrier fluid with 0.88 μm diameter calibrated Latex particles (Merck, France) and visualizing the flow through a 10× objective mounted on an inverted microscope. The concentration of the seeding particles in the solution was prepared to ensure approximately five particles in each interrogation area.

The flow was illuminated by a stroboscope. By shadowgraphy of the seeding particles, images of the flow were taken by a double image digital camera through the inverted microscope. The duration of the stroboscope pulse was between 10 μs and 5 ms. After exposure, the image field was transferred to the storage on the digital camera, so that a second image field could be recorded by the camera. After a specified time delay, $\Delta t = 300 \mu\text{s}$ in our case, a second stroboscope pulse was used to

record another image onto the camera. Both images were then read out of the camera and downloaded to a computer for further processing.

The FlowMap software (Dantec Dynamics, Denmark) was used to analyse these raw image pairs, using an interrogation window size of 64×64 pixels and a 50% window overlap. In order to eliminate the background noise in the gas phase and outside areas of the channel, the raw images were masked by masking function. Then, the masked images were processed by the cross-correlation function, in which way, the raw velocity vectors in the continuous phase were gained. There are also some incorrect vectors remaining from noise peaks in the correlation function. So it is necessary to subsequently validate the μ -PIV vector map. Velocity range and moving averaged validation were used to validate the raw vector maps, resulting in the final vector fields, with a spatial resolution of $48 \times 48 \mu\text{m}$ and 23 vectors across the $600 \mu\text{m}$ channel. A Matlab program was applied to quantify the features of the gaseous threads and formed bubbles on the basis of pixels.

A Rheometric Fluid Spectrometer RFS II (Rheometric Scientific, USA) was employed to characterize the viscosity of the liquids. The surface tension was measured using a tensiometer, by the pending drop technique on a Tracker apparatus (I.T. Concept, France).

In the study of flow patterns for gas-liquid two-phase flow in vertical microchannels, three different liquids, deionized water, ethanol and propanol, with various physical properties were used as the liquid phase; air as the gas phase.

For the study of the characteristics of bubble motion and flow in microchannels, nitrogen was used as the gas phase and de-ionized water as the liquid phase. Three different glycerol (Prolabo, France) concentrations of 25 wt %, 50 wt % and 62 wt % were mixed with water to vary the viscosity of the liquid phase. Different concentrations of sodium dodecyl sulfate (SDS) (Amresco, USA) (0.1 wt %, 0.25 wt %, 0.5 wt %, 0.8 wt %,.) were used as surfactants in the aqueous phase to modify the surface tension.

Different concentrations of polyacrylamide (PAAm) (AN 913 SH, France) (0.1 – 1.25 wt %) were employed as non-Newtonian fluids. They behave as shear-thinning fluids and could be fitted by the power-law model in the range of the shear rates corresponding to the volumetric flow rates of the fluids.

A Matlab program was applied to quantify the features of the gaseous threads and formed bubbles on the basis of pixels.

Experimental results and conclusions

1. Flow patterns for gas-liquid two phase flow in vertical rectangular microchannels

Gas-liquid upward two-phase flow in vertical rectangular microchannels (cross-section: $40 \times 240 \mu\text{m}$ and $40 \times 160 \mu\text{m}$) was investigated by means of a laser image measurement system. Air was used as the gas phase; de-ionized water, ethanol and n-propanol were used as the liquid phase.

Bubbly, slug, annular, annular-stratified and stratified flow were observed.

Bubbly flow: The gas phase is dispersed, forming discrete bubbles in the continuous water phase. The diameters of these bubbles are always less than or equal to the microchannel width. This flow pattern typically occurs at low gas velocities and relatively high liquid velocities.

Slug flow: This flow pattern occurs at low gas and liquid velocities. The lengths of slug bubbles are greater than the microchannel width. The bubbles often have bullet shaped tops.

Annular flow: At medium gas velocities, annular flows are observed. In this flow pattern, a gas core flows along the channel, surrounded by a smooth-thick or serpentine-like liquid film.

Stratified flow: At high gas velocities, stratified flows are observed. The interface of the two phases can be smooth or wavy.

The appearance of stratified flow in microchannels is owing to low aspect ratio of the microchannel, the surface tension force and the mixing effect in the inlet section. The ranges of the relative parameters are: $0.17 < h/w_c < 0.25$, $0.18 < Re_G < 42.48$, $0.12 < Re_L < 26.73$, $1.97 \times 10^{-6} < We_G < 0.19$, $1.64 \times 10^{-5} < We_L < 0.26$.

The flow patterns map and transition lines were plotted with the gas and liquid superficial velocities as the coordinates. The transition lines were affected by the properties of the liquid phase and the size of the microchannels. As the channel width decreased, the slug/annular, annular/annular-stratified and annular-stratified/stratified flow transition lines shift to left. The bubbly/slug flow transition line shifts to left and underside.

A universal flow pattern map was induced from all of the experimental data on

the basis of the aspect ratio H/W , the Reynolds number Re and the Weber number We . And the ranges of these dimensionless numbers are: $0.018 < Re_G < 42.48$, $0.12 < Re_L < 26.73$, $9.50 \times 10^{-9} < We_G < 0.19$, $1.64 \times 10^{-5} < We_L < 0.26$, $0.17 < H/W < 0.25$. The universal flow pattern map is capable to predict the slug and stratified flows for gas-liquid two-phase flow in vertical rectangular microchannels with low aspect ratios.

The experimental data were compared with several transition lines between various flow regimes from literature. It was still hard to predict exactly the flow pattern for two-phase flow according to the existing maps.

For stratified flow, the film thickness decreased with decreasing the liquid flow rate and channel width, and with increasing the gas flow rate. A correlation was proposed to predict the film thickness, which could be used as a tool for the design of the microdevices.

2. Bubble formation in a microfluidic T-junction by cross-flowing mechanism

1) Bubble formation in Newtonian fluids

The squeezing-to-dripping transition for bubble formation in a microfluidic T-junction by cross-flowing rupture technique was investigated using a high-speed digital camera. Experiments were conducted in a glass microfluidic T-junction with the cross-section of the microchannel of $120 \mu\text{m}$ wide and $40 \mu\text{m}$ deep. N_2 bubbles were generated in glycerol-water mixtures with several concentrations of surfactant sodium dodecyl sulfate (SDS). Three different regimes were identified for generating different kinds of bubbles: squeezing, dripping and transition regimes. Various forces exerted on the gaseous thread in different regimes were analyzed. Long slug bubbles were formed in the squeezing regime, while dispersed bubbles in the dripping regime. The transition regime formed short slug bubbles. The bubble sizes in various regimes could be correlated with several dimensionless numbers such as the ratio of gas/liquid flow rates and capillary number. The two-step model for droplets was extended to describe the bubble formation.

The formed bubbles could be divided into two patterns: slug bubbles, which are longer than the width of the channel; dispersed bubbles (bubbly), which are smaller than the channel width. The two different patterns stem from different mechanisms due to various forces involved. The conditions for different kinds of bubbles could be

classified into three regimes with the gas flow rates and the capillary number of the liquid phase as coordinates): long slug bubbles are generated in the squeezing regime; dispersed bubbles in the dripping regime; and short slug bubbles in the transition regime:

-the squeezing regime: the shear stress caused by the liquid phase to the gaseous thread is much smaller than the surface tension force, and is not sufficient enough to collapse the gaseous thread. The expanded gaseous thread blocks the liquid phase, and the accumulated pressure in the obstructed liquid phase is the main force to drive the gaseous thread. This regime occurs in the range of $10^{-4} < Ca < 0.0058$, and the size of formed slug bubbles is $L/w_c > 2.5$.

-the dripping regime: the shear stress caused by the liquid phase is enough to drive and collapse the gaseous thread, and the formation process is controlled by both the shear stress and surface tension. This regime occurs in the range of $0.013 < Ca < 0.1$, and the size of formed dispersed bubbles is typically $\sqrt{L/w_c \cdot w_b/w_c} < 1$.

-the transition regime: the gaseous process is driven by both the squeezing pressure and the shear stress. This regime happens in the range of $0.0058 < Ca < 0.013$, and the size of generated slug bubbles obeys $L/w_c < 2.5$ and $1 < \sqrt{L/w_c \cdot w_b/w_c}$.

Long slug bubbles were generated in the squeezing regime. The additional squeezing pressure controls the formation process. The bubble size could be simply correlated by the ratio of gas/liquid flow rates. The formation process could be divided into three stages: (i) the two fluids form an interface at the T-junction. The gas stream penetrates into the main channel and a gaseous thread begins to expand mainly in the radial direction from the main channel point of view until a neck appears. This expansion stage has a duration t_e ; (ii) the thread experiences the collapse stage with a collapse time t_c . The flow in the main channel distorts the thread in the downstream direction. The interface on the upstream side of the thread moves downstream. (iii) the neck propagates downstream and the shortest distance from the interface to the wall W_m decreases until it pinches off finally, thereby forming a new leaving bubble. The pinch-off time t_p is quite short. The formation mechanism of long slug bubbles is essentially controlled by the gas and liquid flow rates. The relationship between the normalized bubble length and the ratio of gas/liquid flow rates is linear and the slope is equal to the depth/width ratio of the channel. The squeezing pressure in the

obstructed liquid phase is much higher than the viscous force on the gaseous thread. Therefore, the squeezing pressure is the dominant force to drive and pinch-off finally the thread.

Dispersed bubbles were generated in the dripping regime. The shear stress exerted on the gaseous thread drives and collapses the thread against the surface tension. The bubble size could be correlated by the capillary number of the liquid phase. The additional force, such as squeezing pressure also influences the formation process, except bubbles of too small size that don't affect significantly the liquid flow.

Short slug bubbles were generated in the transition regime. The additional squeezing pressure, the shear stress and the surface tension contribute simultaneously to the bubble formation. The bubble size could be correlated by both the capillary number of the liquid phase and the ratio of the gas/liquid flow rates.

The two-step model was applied to describe the bubble formation in our study. The bubble volume could be considered as the addition of two consecutive parts: the expansion volume and the accumulated volume during the collapse stage. The influence of key parameters on the equivalent radius of the thread in the expansion stage as well as the collapse time was also quantitatively investigated.

2) Bubble formation in non-Newtonian fluids

The effects of the rheological properties of PAAm solutions (0.1-0.5 wt%) on the formation of bubbles were investigated. N₂ bubbles were generated in different concentrations of polyacrylamide (PAAm) solutions. Various flow patterns were observed at the T-junction by changing gas and liquid flow rates. The breakup mechanism for bubbles was investigated to gain insight into the effects of flow rates and concentrations of PAAm solutions on bubble size. The gaseous thread collapses at a constant speed in the collapse stage; while during the final pinch-off stage, the variation of the minimum width W_m of the gaseous thread with the remaining time $(T-t)$ could be scaled as $W_m \sim (T-t)^{0.21}$. The bubble size increases non-linearly with the increase of gas/liquid flow rates ratio, and decreases with increasing the concentration of PAAm solutions.

The flow patterns for bubbles generated in non-Newtonian fluids could be divided into three regimes: slug bubble, intermittent flow and stratified flow regime or jetting flow regime.

Five differences were observed between bubble formation in Newtonian fluids

and non-Newtonian fluids: the tip of the gaseous thread is sharp in non-Newtonian fluids, while, in Newtonian fluids, it is parabolic; the gaseous thread just attaches to part sides of the channel walls and it is asymmetric to the middle of the channel in non-Newtonian fluids, while, in Newtonian fluids, the gaseous thread attaches all of the channel walls or none of them and it is symmetric to the middle of the channel; the gaseous thread is narrower than the channel in non-Newtonian fluids, while, in Newtonian fluids, its width almost equals to that of the channel; the thread is not uniform in the axial direction, and it becomes wider as it propagates to the downward direction in non-Newtonian fluids, while it is almost uniform in axial direction in Newtonian fluids, except for the region near the neck; in non-Newtonian fluids, the rear is narrower than its tip for just formed bubble, and all of the bubble is narrower than the channel, while in Newtonian fluids, the bubble is uniform in the radial direction.

The gaseous thread collapses at a constant speed in the collapse stage and the collapse process for gaseous thread in non-Newtonian fluids fluctuates and the amplitude of the fluctuation is strengthened as the flow rates increase. This phenomenon is owing to the shear-thinning property of the PAAm solution, i.e., its viscosity decreases with the increase of the shear rate. The diminishing neck of the gaseous thread decreases the shear rate of the surrounded liquid phase, therefore, the viscosity of the PAAm solution increases. The viscous forces exerted on the thread become greater and affect the collapse speed, inducing fluctuation to the collapse process.

The speed of the gaseous thread in the final pinch-off stage increases abruptly and is non-linear. The final pinch-off process of the thread in the present experiment is also could be regarded as a 3D unstable one. The relationship between the width of the neck and the remaining time is: $W_m \sim (T-t)^{0.21 \pm 0.01}$, which signifies that the pinch-off stage of the thread is not just controlled by viscous and surface tension forces, but also influenced by inertia.

The effects of the concentration of the PAAm solutions and the ratio of gas/liquid flow rates on the size of formed bubbles were studied. The size of formed bubbles increases non-linearly with the increase of the ratio of gas/liquid flow rates, and decreases with increasing the concentration of PAAm solutions. For bubble formation in non-Newtonian fluids, the gaseous thread is narrower than the channel and the inertia, viscous and surface tension forces could not be ignored, in comparison with

the accumulated pressure. Furthermore, the shear-thinning properties of the PAAM solutions complicate the bubble formation process and finally influence the bubble size.

3. The velocity distributions for single phase flow in microchannels measured by micro-PIV

The velocity distributions for Newtonian and non-Newtonian single flow in microchannels were investigated using a micro-Particle Image Velocimetry (micro-PIV) system. Experiments were conducted in a PMMA square microchannel with 600 μm (wide) \times 600 μm (deep) and 400 μm (wide) \times 400 μm (deep). Water with different concentrations of glycerol was used as Newtonian fluids, while different concentrations of polyacrylamide (PAAM) were used as non-Newtonian fluids, which were 0.1 wt%, 0.25 wt%, and 0.5 wt%. The experimental data and the predicted values calculated by traditional theory for conventional large size channels were compared. And the result showed that the velocity profiles are followed by the traditional theories for both Newtonian and non-Newtonian fluids in microchannels with the order of magnitude of 100 μm .

For Newtonian single phase flow in microchannels, the velocity distributions increase with increasing the volumetric flow rate; the velocity distribution is independent of the viscosity of the fluids at fixed volumetric flow rates and the size of the channel; the maximum value of the velocity decreases with increasing the channel width. The flare angle increases with increasing the channel width; the three-dimensional velocity profiles could be constructed by measure the velocity distributions at different height using micro-PIV technique.

The laminar flow profile of non-Newtonian fluids in 600 \times 600 μm and 400 \times 400 μm microchannels was also investigated by the micro-PIV technique. The experimental data were compared with the classical theory at macroscale. The velocity profile is followed by the traditional theories for non-Newtonian fluids in microchannels.

The dimensionless velocity increases with decreasing the exponent n , i.e., increasing the concentration of the PAAM solution. The velocity profile $u(y)$ in the mid-plane of the microchannels increases with increasing the liquid flow rates for a given fluid within the same microchannel. The maximum velocity increases with decreasing the size of the microchannel. Obviously, the profile becomes flattened with

the increase of the channel's size. Although the local velocity profile is varied with the volumetric flow rates, the size of the microchannel, the relationship between the dimensionless velocity and the dimensionless distance is determined just by the exponent n .

The measured velocity profile provides a method to predict the exponent n of the shear-thinning fluids and the shear rate. This method provides the possible applications in rapid and repeated measurements of the rheology properties for shear-thinning non-Newtonian fluids.

4. The formation of bubbles in microfluidic flow-focusing devices

1) Bubble formation in Newtonian fluids

The formation of bubbles in the third kind of microfluidic flow-focusing devices was investigated using a high speed digital camera and a micro-Particle Image Velocimetry (micro-PIV) system. Experiments were conducted in two different PMMA square microchannels of respectively 600×600 and 400×400 μm . N_2 bubbles were generated in glycerol-water mixtures with several concentrations of surfactant sodium dodecyl sulfate (SDS).

Various flow patterns were obtained at the cross-junction by changing gas and liquid flow rates. The flow patterns map was drawn by using the gas and liquid flow rates as coordinates.

Different kinds of bubbles, namely slug bubble, isolate bubble and satellite bubble, can be observed in water in the cross-junction of the flow-focusing device.

The influence of various operating parameters on the size of bubble, like gas and liquid flow rates, liquid viscosity and size of the microchannel, were quantified. The bubble size decreases with the increase of both the liquid flow rate and liquid viscosity. The bubble size increases with the gas flow rate and the width of the microchannel. A correlation, under more extended experimental conditions than previous works, were proposed for predicting the bubble size, basing on the ratio of gas/liquid flow rates and the liquid Reynolds number. This shows that the effect of inertia makes a major contribution to the bubble formation.

No significant and measurable impact of the surface tension was observed on the bubble formation in our experiments for various concentrations of SDS ranging from 0 to 0.8 wt%. Probably, a surface tension measured under static conditions and at

macroscale could be irrelevant to a fast and dynamical phenomenon for bubble formation. This suggests that the breakup mechanism is not simply governed by a competition between the shear stresses and surface tension. The order of magnitude of three major forces in two-phase flows at microscale was compared: shear stress (viscous forces) $\tau = \mu du/dy$, kinetic energy (inertial forces) $\Delta P = \rho u^2/2$ and surface energy (surface tension) $\Delta P_\sigma = 2\sigma/(W_c/2)$. The range of these parameters in the present study is as follows: $\tau = [0.09, 40]$ Pa; $\Delta P = [0.1, 80]$ Pa and $\Delta P_\sigma = [210, 720]$ Pa. The relative importance of key forces governing two-phase flows in microchannels is then given by the following order: viscous forces < inertial forces < superficial forces. The dominant superficial forces could explain the negligible effect of the surface tension that is also experimentally observed in the microfluidics literature.

The bubble formation process can be observed by a high speed digital camera. The measurements of flow fields around a forming bubble, in particular the gaseous thread, could give quantitative information about the role of the liquid phase during the bubble formation process

A typical breakup process can be described by three stages (Figure 4a-f): first, after the pinch-off of a bubble, the gaseous thread expands mainly in radial direction until it reaches the edge of the outlet channel (Figure 4a-b), but just expands slightly in axial direction until it reaches the maximum value. Therefore, the length L_t increases sharply, while the width W_m increases gently. This stage is called the thread expansion stage and the period is named as the expansion time t_e . Second, the flow-focusing liquids drive the thread in its axial direction and a visible neck forms. The neck collapses at a constant rate; meanwhile, the tip of the thread propagates downstream (Figure 4c-e). This stage is the thread collapse and the period is named as the collapse time t_c . In the third stage, the thread contracts rapidly and pinch-off (Figure 4e-f). This stage corresponds to the pinch-off, and its time is named as t_p . This formation process is quite similar to the breakup process that proceeds in a coflowing flow-focusing device with a confined geometry of a long and narrow orifice.

The formation mechanism of slug bubble at the cross-junction was investigated to gain insight into the effects of liquid and gas flow rates, and viscosity of the liquid phase on the breakup rate of the gas thread, and on the collapse time. The experimental data of the breakup rate and the collapse time of the gas thread were described as a function of the liquid superficial velocity u_l , the ratio of the gas and

liquid flow rates Q_g/Q_l and Reynolds number $Re = \rho ul / \mu$.

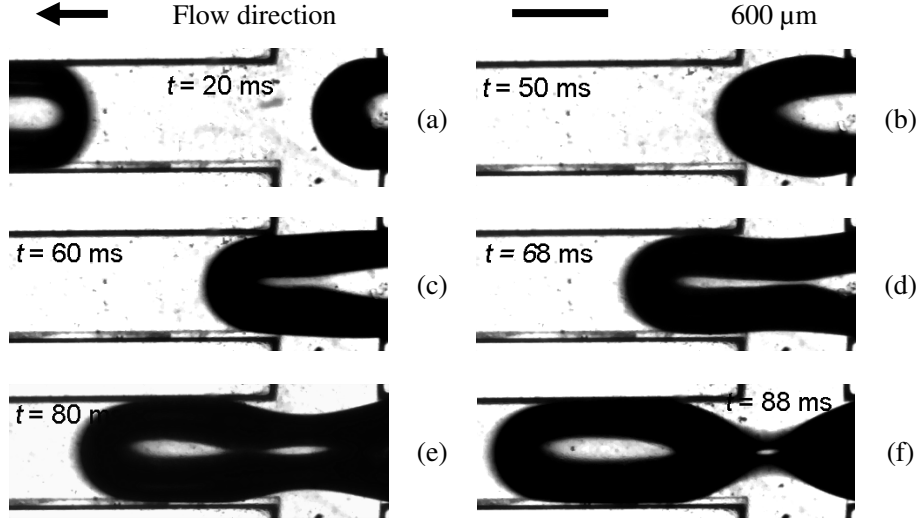


Fig. 4 (a)-(f) Optical micrographs of the evolution of the periodic bubble formation process.
Liquid phase: 0.5 wt% SDS and 62 wt% glycerol -water mixture, $Q_g = Q_l = 840 \mu\text{L}/\text{min}$

The collapse rate $\Delta W_m / \Delta t$ increases with increasing continuous viscosity. The collapse time t_c decreases with increasing continuous viscosity. Obviously, the increase of liquid viscosity accelerates the formation of bubble by intensifying the shear stress. Therefore, higher viscosity results in shorter formation time and higher collapse rate.

As the liquid flow rate is increased, the collapse time t_c decreases nonlinearly. The increase of liquid momentum pinches-off the neck of the gaseous thread quicker and shortens the collapse time.

No significant and measurable influence of the surface tension was observed in our experiments for various concentrations of SDS ranging from 0 to 0.8 wt%. Probably, a surface tension measured under static conditions and at macroscale could be irrelevant to a very fast phenomenon that is the formation of a microbubble. Furthermore, this suggests that the breakup mechanism is not simply a competition between the shear stresses and surface tension.

According to the classical theory of capillary breakup, the thinning rate of the thread is independent of the imposed velocity and correlates with the value of the Ohnesorge number, $Oh^2 \equiv Ca/Re = \mu^2 l / (\rho \sigma l)$ (Ca is the capillary number, Re is the Reynolds number, $Ca = \mu u / \sigma$, $Re = \rho ul / \mu$, where μ , u , ρ and σ are the viscosity, velocity, density and surface tension of the liquid phase respectively, l denotes a

typical radial dimension). For $Oh < 1$, the collapse rate of the thread is given by $u_c \approx (\sigma/\rho l)^{1/2}$; for $Oh > 1$, $u_c \approx (\sigma/\mu)$. For our experiments, $\mu \approx 1$ to 10 mPa.s, $\rho = 1000$ kg.m⁻³, and $\sigma \approx 30$ to 40 mN.m⁻¹, $l = 600$ μ m, $Oh \equiv (Ca/Re)^{1/2} = \mu/(\rho\sigma l)^{1/2} \approx 0.006-0.073$, $u_c \approx (\sigma/\rho l)^{1/2} \approx 0.22-0.26$ m.s⁻¹. These estimates are 1 to 2 orders of magnitude larger than the collapse rate that we measured experimentally.

According to our observations: (1) the collapse rate of the thread neck is mainly governed by the liquid flow rates, while it is also slightly dependant on the viscosity of the liquid phase, and (2) the fact that the collapse rate is much smaller than that of the capillary breakup is intriguing. We attribute this phenomenon to the constant supply of the liquid flow by the syringe pump. After the thread attaches the edge of the main channel and the width of the neck reaches its maximum, the liquid flow focuses on the thread at a fixed flow rate by increasing the pressure supplied by the pump. The increased hydrostatic pressure of the liquid leads to the squeezing of gas-liquid interface at a rate proportional to the flow rate. Meanwhile, the viscous drag force of the liquid prevents the squeezing at the axial direction. To verify this explanation, we first plotted the rate evolution of the thread tip and of the cross-section area of the thread, and measured the velocity fields of the liquid phase around the thread by a micro-PIV system. Then we correlated the collapse rate of the thread and the collapse time t_c in the form of several dimensionless numbers in function of the ratio of the gas/liquid flow rates and the Reynolds number.

During the pinch off stage, the variation of the minimum width of the gaseous thread W_m with the remaining time could be scaled as $W_m \propto (Q_g/Q_l)^{-0.15} (T-t)^{1/3}$. Certainly, the magnitude of W_m depends on the gas and liquid flow rates, liquid viscosity and size of the microfluidic device. Besides the time scaling, W_m increases with the increase of the liquid flow rates and the size of the device, with the decrease of the liquid viscosity and the ratio of gas/liquid flow rate.

In Figure 5a-f, we present the instantaneous velocity fields inside the continuous phase during one period ($T = 218$ ms) of bubble formation in a 0.8 wt% SDS -water mixture, at $Q_l = 600$ μ L/min, $Q_g = 840$ μ L/min. At $t = 0$ ms, a new cycle of the bubble formation begins. The velocity profile in the liquid phase is quite similar to the flow in a T-junction. At $t = 10$ ms, the thread expands mainly in the axial direction, the liquid and the gas flows almost do not influence each other. So the velocity fields of the liquid phase both in the main channel and the side channels are similar to that at t

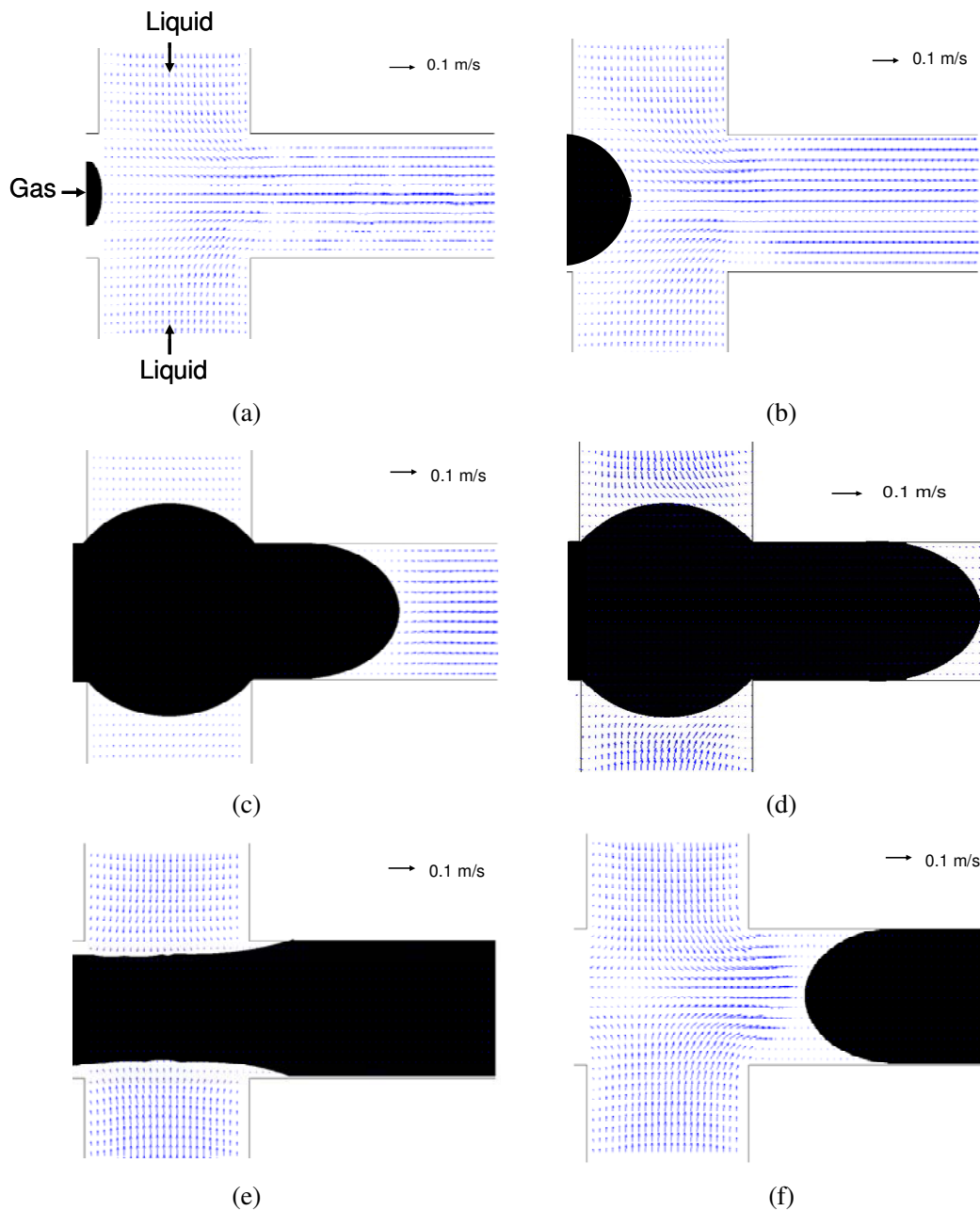


Fig. 5 Velocity field in the continuous flow during one period of a bubble formation. Gas phase: N_2 , $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$; liquid phase: 0.8 wt% SDS -water mixture, $Q_l = 600 \mu\text{L}/\text{min}$. (a) $t = 0 \text{ ms}$; (b) $t = 10 \text{ ms}$; (c) $t = 54 \text{ ms}$; (d) $t = 74 \text{ ms}$; (e) $t = 206 \text{ ms}$; (f) $t = 218 \text{ ms}$

$t = 0 \text{ ms}$. At $t = 54 \text{ ms}$, it is in the bubble expansion stage. The thread expands slightly in and radial direction. The liquid flow is obstructed and the velocity of the liquid phase around the neck of the thread apparently decreased. At $t = 54 \text{ ms}$, the width of the thread neck reaches its maximum. The radius of curvature reaches the minimum. The Laplace disjunction pressure across the interface reaches the maximum. The

radial velocity of the liquid phase reaches its minimum. At $t = 74$ ms and $t = 206$ ms, the thread experiences the second stage. At $t = 74$ ms, the liquid thins the thread neck and flows around the neck of the thread. The radial velocity diverges from the maximum width of the neck. At $t = 206$ ms, the velocity in the radial direction is predominant. The liquid flow diverges at the gas-liquid interface, partly flowing into the gas inducing channel, partly flowing into the outlet channel. At $t = 218$ ms, the formation period ends after the break-up of the thread and the formed bubble is released into the main channel. The liquid diverges at the cross-junction, partly flowing into the gas channel due to the thread contraction just after the pinch-off; partly flowing into the outlet channel and driving the slug bubble to move forward. Unlike the instability mechanism for the capillary breakup, the completely bounded breakup in a flow-focusing device should be dominated by both the liquid momentum inducing an elongation effect pushing the bubble in the microchannel and the shear stress due to liquid velocity profile acting on the thread thinning.

The formation of dispersed small bubbles in microfluidic flow-focusing devices was investigated experimentally by means of a high speed camera. The parameters such as liquid flow rates, the viscosity and surface tension of the liquid phase, influencing the size of formed bubbles were studied. The bubble size in bubbly regime decreases with the increase of the flow rates and viscosity of the liquid phase, with the decrease of the surface tension. The bubble formation mechanism was discussed. A new power law model was proposed to predict the relationship between the size of formed bubble and the local capillary number.

2) Bubble formation in non-Newtonian fluids

Bubble formation in non-Newtonian fluids in microfluidic flow-focusing devices was investigated using a high-speed digital camera and a micro-Particle Image Velocimetry (micro-PIV) system. N_2 bubbles were generated in different concentrations of polyacrylamide (PAAm) solutions used as non-Newtonian fluids. Flow patterns were obtained at the cross-junction by varying gas and liquid flow rates. The velocity fields in the liquid phase around the gaseous thread were determined by micro-PIV measurements. We have investigated the mechanism of bubble formation in PAAm solutions. The effects of flow rates of both phases, concentrations of the PAAm solutions and the size of microfluidic devices on the bubble size were also studied. A correlation was proposed to predict the size of bubbles generated in PAAm

solutions in microfluidic flow-focusing devices.

Different flow patterns: slug bubble flow, missile bubble flow, annular flow and intermittent flow were observed. Slug bubble, occurs at low liquid flow rates. At medium liquid flow rate, missile bubbles can be observed. This kind of bubble has a bullet tip. Moreover, missile bubble is elongated heavily by the viscoelastic fluids. The missile bubble is not wetting the channel wall. At high liquid flow rates, annular flow could be observed.

The ratio of the bubble width to that of channel W_b/W_c decreases nonlinearly as increasing Q_l/Q_g above the critical Q_l/Q_g value. The critical value of Q_l/Q_g is influenced by gas flow rate, concentration of PAAm solutions and size of microfluidic devices. The critical value of Q_l/Q_g decreases with increasing the gas flow rates, the concentration of PAAm solutions and decreasing the size of the microfluidic device. A typical formation process for missile bubbles could be described by four stages: Expansion, stretching, collapse and pinch-off. The expansion, collapse and pinch-off stages are quite similar to that for slug bubbles. The stretching stage is peculiar for the missile bubbles as the gaseous thread propagates in the axial direction and remains the width in the radial direction. This phenomenon dues to the shear-thinning property of the PAAm solution and delays the pinch-off of the gaseous thread. The shear rate varies in the radial direction. Therefore, the viscosity of the liquid phase around the thread varies in the radial direction. The thread begins to collapse dues to the Plateau-Rayleigh instability and finally pinches-off.

The shear-thinning property of the fluids around the gaseous thread influences the bubble formation process in the expansion, stretching and collapse stages, but not the pinch-off stage. Dues to the shear-thinning property, the thread favors to propagate in the axial direction and contract in the radial direction, compared to the gas bubbles generated in Newtonian fluids in the same kind of devices.

During the first stage, the gaseous thread expands by the continuous supply of the gas storage tank and the rate of the expansion is governed by the pressure difference of the gas and liquid phases. The initial tip velocity is slightly accelerated by the liquid phase. Later on, the tip velocity is accelerated by the partly obstructed liquid phase flow, and the tip of the thread experiences a large acceleration before its plateau. Unlike the continuous acceleration of the gaseous tip in Newtonian fluids, the tip velocity fluctuates with a certain speed. This phenomenon could be also explained by the shear-thinning property of the PAAm solutions. As the tip propagates, the

width of the thread contracts, while the superficial liquid velocity is constant. Therefore, the shear rate along the thread becomes smaller and thus the smaller shear force acts on the gaseous thread, which prevents the acceleration of the gaseous tip.

The gaseous thread only takes a little part of the channel, compared to the liquid phase. This phenomenon means that the liquid phase is not obstructed like that in Newtonian fluids.

The bubble size formed in non-Newtonian fluids in microfluidic flow-focusing devices was investigated. The bubble size decreases as increasing liquid flow rate at a fixed gas flow rate, and increases with the increase of the gas flow rate at a certain liquid flow rate. The bubble size is also decreases with increasing the ratio of liquid/gas flow rates Q_l/Q_g . At a fixed ratio of liquid/gas flow rates Q_l/Q_g , the bubble size is not apparently influenced by gas flow rates. The bubble size decreases with increasing the concentration of PAAm solutions at a fixed liquid/gas flow rate Q_l/Q_g . The bubble size decreases with decreasing the size of microfluidic device at a fixed liquid/gas flow rate Q_l/Q_g . A correlation, based on the ratio of gas/liquid flow rates and of gas/liquid Reynolds numbers, was proposed to predict the size of bubbles formed in non-Newtonian fluids in flow-focusing microfluidic devices.

The relationship between the bubble shape and flow fields in the liquid phase was studied quantitatively by the measurement of micro-PIV technology. The influences of the operating parameters on this relationship were also investigated. The changing trend of liquid flow and the concentrations of PAAm solutions could be determined by the bubble shape, which provides a new way and method to predict and measure the flow index of non-Newtonian fluids.

5. Bubble coalescence in a microchannel with a sudden expansion section

1) Bubble coalescence in Newtonian fluids

For air-water two phase flows, the surface tension is too big that the formed bubble coalesces quickly and stretches along the wall of the expansion and attaches to the four direction of the wall.

When we increased the viscosity and decreased the surface tension of the liquid, the coalescence for bubbles seldom occurs, which results in quite uniform bubbles and the bubble size can be adjusted by changing the flow rates of both phases.

When we just decreased the surface tension of the liquid by adding SDS

surfactant into water, we found that coalescence sometimes happens. The aligned bubbles affect the bubble coalescence process.

2) Bubble coalescence in non-Newtonian fluid

The position of the two bubbles increases non-linearly. At the moment of the coalescence, the former bubble moves backward suddenly, while the latter moves forward abruptly. The mass centre of the coalesced bubble lies between those for bubble (1) and bubble (2). Before coalescence, the speed of bubble (1) almost equals to that of bubble (2). But at the moment of coalescence, the speed of bubble (1) suddenly decelerates, while that of bubble (2) accelerates abruptly. After that, the coalesced bubble decelerates and moves forward at decreasing speeds. The joint of the aligned bubbles also accelerates suddenly at the moment of the coalescence.

An interstitial film is formed between two bubbles. The pressure is minimum at the center of the interstitial film. This low pressure induces a ‘bridge’ between two bubbles, which grows and disappears until the aligned bubbles coalesce.

The probability for coalescence was calculated. The probability for coalescence is less than 25%, and the total probability is 9.6%.

Under the same gas and liquid flow rates, the coalescence occurred far away from the entrance of the expansion needs more times. The coalescence time decreases with the increase of the distance of two bubbles.

The velocity profile in the non-Newtonian fluids in the expansion device does not change a lot when the bubble passes-by. This phenomenon is different from that in non-Newtonian fluids in conventional-dimension columns. The flow rates are not the major role played on the bubble coalescence process.

Two different mechanisms for bubble coalescence were observed. Mechanism 1 is the coalescence of two different bubbles, even in the main channel of the microfluidic device. Mechanism 2 is the case that one bubble firstly is divided into two isolate bubbles at the entrance of the expansion device, then the two divided bubbles coalesce in the expansion area and form a new bubble.

The transition for two different mechanisms for bubble coalescence is decided by the gas and liquid flow rates. At a fixed gas flow rate, the bubble coalescence varies from mechanism 1 to 2, when the liquid flow rate increases to a certain value. We call this value “critical liquid flow rate”. The critical liquid flow rate increases with the increase of the gas flow rate.

6. Bubble behavior in a microchannel with a symmetric loop

The breakup mechanism of bubbles in the divergence T-junction was investigated. The pair bubbles at the convergence T-junction were studied.

Bubble behaviors at the T-junction divergence could be divided into six regimes: (1) asymmetric breaking of bubbles (BA); (2) symmetric breaking of bubbles I (BS I); (3) symmetric breaking of bubbles II (BS II); (4) symmetric breaking of bubbles III (BS III); (5) transition regime between breaking and non-breaking of bubbles (TR); (6) Non-breaking of bubbles (NB).

The breakup mechanisms are different for three various breakup types.

The breakup process of symmetric breaking of bubbles I (BS I) is controlled by the liquid flow, as the squeezing pressure produced in the liquid phase by the obstructed bubble squeezes bubbles. The squeezing pressure thins the neck of bubble in the normal direction and stretches the bubble in the tangential direction of the bubble neck.

For the bubble breakup process of symmetric breaking of bubbles II (BS II), the mechanism is the same as that for BS I before the gas appeared, after which, the liquid phase flow through the gas and the shear forced exerted on the bubble and the inertia also influence the breakup process.

For the bubble breakup process of symmetric breaking of bubbles III (BS III), the inertia controls the breakup process.

Non-breaking of bubbles (NB) happens because the extension degree of bubbles cannot meet the conditions for those of breaking. Therefore, bubble flow out of the loop favoring one divergence of the T-junction.

The transition for different types of bubble breaking can be predicted by the relationship between the bubble length and capillary number.

The behavior of pair bubbles converged at the convergence T-junction was studied. The size of pair bubbles decreases with the increase of the liquid flow rates, and increases with the increase of the gas flow rates. The bubble size could be controlled by adjusting the gas and liquid flow rates.

Outlook

In this thesis, the flow patterns for gas liquid two phase flow and bubble formation and behavior of bubble moving were investigated experimentally by means of a high speed camera and a micro-Particle Image Velocimetry (μ -PIV) system. These results give quantitative information for a complete period of bubble formation, moving, and could serve as the basis for further experimental investigations and numerical simulation, and for the design of microfluidic devices in industrial processes such as mass transfer and chemical reaction at microscale.

The physical mechanisms for the transition of flow patterns, the formation, coalescence and breakup of bubbles in microchannels need to be further strengthened. The universal flow patterns map for gas liquid two phase flow in microchannels should be attempted to construct, on the base of more experimental data and physical analysis.

The formation mechanisms for bubbles in various kinds of microchannels are different. The reported experimental data on bubble formation in microchannels should be classified. The physical model for bubble formation should be constructed on the basis of the formation process or force balance, to predict the size of formed bubbles.

The rheological property of the liquid phase influences the bubble behaviors in microchannels. The investigation of bubble behavior in non-Newtonian fluids in microchannels is still at elemental stage. The behavior of bubbles in different kinds of non-Newtonian fluids should be studied experimentally and theoretically, as well as on simulation.

Bubble management is re-controlling of the generated bubbles to achieve the desired goals for application. The breaking of bubbles is one kind of bubble management. The reported literature on this field is seldom. More experimental data should be completed. The parameters influencing the bubble breaking need to be studied. The physical model could be constructed.

Currently, the measurements of velocity fields in microchannels using the micro-Particle Image Velocimetry (micro-PIV) system are limited. More velocity distributions at various backgrounds should be completed.

摘要

微流体技术是近年来兴起的一种前沿技术，气液两相流是其重要的研究内容。本文用自制的激光影像系统、高速摄像机研究了微通道内气液两相流、气泡的生成及流动特性；用微粒子成像测速仪(micro-PIV)研究了微流体内的速度场分布。具体研究内容包括：

观测了垂直矩形微通道内气液两相流流型：泡状流、弹状流、环状流、环状一分层流、分层流。建立了相应的流型转变图。提出了一个液膜厚度的预测模型，预测值与实验值吻合良好。

研究了错流 T 型微通道内气泡在牛顿流体及非牛顿流体内的生成。气泡在牛顿流体中的生成区域可以分为挤压区、过渡区和滴状区。提出了各区域内气泡尺寸的预测模型。非流顿流体 PAAm 溶液的剪切变稀特性影响气泡头的形状、气泡生成过程以及气泡的生成体积。

用 micro-PIV 测量了方形截面微通道内单相流的流场分布，实验值与理论值吻合良好。速度场分布的测量结果提供了一种预测非牛顿流体流变性质的新方法。

研究了聚焦流十字型微通道内气泡在牛顿流体及非牛顿流体中的生成机理。考察了操作条件对弹状气泡生成过程及尺寸的影响，并提出了气泡夹断速度和生成尺寸的预测模型。研究表明弹状气泡的生成过程分为膨胀、夹断和脱离三个阶段，气泡头颈部在夹断阶段的速度由流体产生的积压控制；脱离阶段中气泡头颈部最小宽度与剩余时间呈系数为 $1/3$ 的指数关系。实验发现非牛顿流体 PAAm 溶液对气泡头产生拉伸作用，提出了基于气液流量比和雷诺数比的气泡尺寸预测模型。基于气泡形状和流场分布的关系，提供了一种定性预测流体流变性质的新方法。

研究了气泡在含有突扩结构的微通道内的聚并现象。随着牛顿流体表面张力的减小，聚并概率大大降低。气泡在非牛顿流体中的聚并时间随着聚并位置的增大而增大，随着两相连气泡之间的距离的减小而减小。发现了两种不同的聚并机理。

研究了气泡在含有环形结构的微通道内的流动行为。发现了气泡在 T 型分岔口的六种不同行为。提出了 T 型分岔处气泡分裂与非分裂转变线的预测模型。基于气泡在分岔口出口的成对行为，提供了一种气泡管理中的成对气泡生成的方法。

关键词：微流体；气液两相流；气泡； micro-PIV；聚并；破裂；非牛顿流体

ABSTRACT

Microfluidics is a cutting-edge technology emerged in recent years. And gas-liquid two-phase flow is an important research project in microfluidics. The gas-liquid two-phase flow behaviors, the bubble formation and moving behaviors in microchannels were investigated in the present thesis, by using a home-made laser image system and a high speed digital camera. The velocity distributions of the microfluidics were investigated with the help of micro Particle Image Velocimetry (micro-PIV). The specific studies were included as follows:

The gas-liquid two-phase flow in vertical rectangular microchannels was investigated and five flow patterns were observed: bubbly, slug, annular, annular-stratified and stratified. A flow pattern map was constructed corresponding to the experimental data. A model was proposed to predict the film thickness. The predicted values agreed well with the experimental data.

The bubble formation in both Newtonian and non-Newtonian fluids in a cross-flowing microfluidic T-junction was investigated. Various bubbles were generated in three different flow regimes: the squeezing, the dripping and the transition (squeezing-to-dripping) regimes. Models for each regime were proposed to predict the bubble size. The shear thinning property of the PAAm solutions plays an important role on the shape and evolution of the gaseous thread, and the ultimate size of bubbles.

The velocity profile for single phase in square microchannels was measured by a micro-PIV system, and the experimental results were in good agreement with the values calculated by the classical theory. The measured velocity profile for non-Newtonian fluids could provide a new method for predicting the rheology property of non-Newtonian fluids.

The mechanism for bubble formation in both Newtonian and non-Newtonian fluids in microfluidic flow-focusing devices was investigated. The influences of the parameters on the formation process and the size of slug bubbles were studied. The models for predicting the collapse speed and the bubble size were proposed, respectively. The results showed that the bubble formation process could be divided into three stages: expansion, collapse and pinch-off stages. The collapse speed of the gaseous thread in the second stage is controlled by the squeezing pressure, and is

proportional to the liquid flow rates; while the minimum width of the neck of the gaseous thread in the third stage could be scaled with the remaining time to the ultimate pinch-off as a power law with an exponent of $1/3$. The experimental results showed that the PAAM solutions prolong the gaseous thread in the tangential direction of the neck. A model was proposed to predict the bubble size generated in the PAAM solutions, on the basis of the ratio of gas/liquid flow rates and that of the Reynolds number of both phases. A novel approach to predict the rheology property of non-Newtonian fluids qualitatively, based on the relationship between measured velocity profile and the bubble shape, was brought forward.

Bubble coalescence in a microchannel with an expansion section was studied. For Newtonian fluids, the diminishing of the surface tension can reduce the probability of the coalescence. For non-Newtonian fluids, the coalescence time is prolonged with the increase of distance for the position of coalescence, and also with the increase of the distance between two aligned bubbles. Two different mechanisms for bubble coalescence were analyzed.

The bubble behavior in a microchannel with a loop was investigated. Six different flow regimes were observed in the T-junction divergence. A simple model was proposed for predicting the transitions between various breaking and non-breaking regimes. A new method for bubble management was provided for generating pair bubbles, based on the recombination behavior of dual bubbles at the outlet of the loop.

KEY WORDS: Microfluidics; Gas-liquid two-phase flow; Bubble; micro-PIV; Coalescence; Breakup; non-Newtonian fluid

目 录

前言	1
第一章 文献综述	2
1.1 微通道内气液两相流流型研究	3
1.2 微通道内气泡（液滴）行为研究	9
1.2.1 气泡（液滴）的生成	9
1.2.1.1 气泡（液滴）在错流接触 T 型微通道内的生成	11
1.2.1.2 气泡（液滴）在对流接触 T 或 Y 型微通道内的生成	19
1.2.1.3 气泡（液滴）在聚焦流十字型微通道内的生成	20
1.2.2 气泡（液滴）在复杂结构微通道内的流动	27
1.2.3 微流体的 micro-PIV 测量	30
1.3 本章小结	30
1.4 本文结构安排	31
第二章 实验装置及流程	32
2.1 微通道的制作及结构	32
2.1.1 玻璃微通道的制作	32
2.1.2 硬质高分子聚合物微通道的制作	34
2.2 实验装置及流程	36
2.2.1 实验流程	36
2.2.1.1 激光成像实验装置	36
2.2.1.2 气泡的生成及流动实验装置	38
2.2.2 微粒子成像测速仪（micro-PIV）的原理	40
2.2.2.1 micro-PIV 实验系统	42
2.2.2.2 micro-PIV 示踪粒子	43
2.2.2.3 micro-PIV 的体照明方式	45
2.2.2.4 图像处理技术	46
2.2.3 流体性质	48

2.2.3.1 粘度测量	48
2.2.3.2 表面张力测量	49
2.2.3.3 气液两相流中牛顿流体的物性数据	49
2.2.3.4 气液两相流中非牛顿流体的物性数据	50
2.2.4 图像处理	52
第三章 竖直矩形微通道内气液两相流流型特征	53
3.1 流型	53
3.2 流型图	55
3.3 与报道的实验值的对比	59
3.4 与已有模型的对比	61
3.4.1 与 Taitel 模型的对比	61
3.4.2 与修正的 Mishima 和 Ishii 模型的对比	63
3.5 分层流中的液膜厚度	66
3.6 结论	67
第四章 气泡在微通道内的生成及流动特性	69
4.1 气泡在错流 T 型微通道内的生成	69
4.1.1 气泡在牛顿流体中的生成	69
4.1.1.1 产生气泡类型	69
4.1.1.2 挤压区内弹状气泡生成	71
4.1.1.3 滴状区内分散气泡生成	76
4.1.1.4 过渡区域内气泡生成	78
4.1.1.5 “两步法”模型分析实验数据	81
4.1.2 气泡在非牛顿流体中的生成	84
4.1.2.1 流型	84
4.1.2.2 气泡生成过程及机理	85
4.1.2.3 气泡生成尺寸	89
4.1.3 结论	90
4.2 矩形微通道内单相流的 micro-PIV 测量	92
4.2.1 牛顿流体单相流的 micro-PIV 测量	92
4.2.2 非牛顿流体单相流的 micro-PIV 测量	95

4.2.3 结论	100
4.3 聚焦流十字型微通道内气泡的生成	101
4.3.1 牛顿流体中气泡的生成	101
4.3.1.1 气泡生成的种类	101
4.3.1.2 弹状气泡的生成尺寸、过程及原理	105
4.3.1.3 泡状气泡的生成	122
4.3.1.4 结论	126
4.3.2 非牛顿流体中气泡的生成	127
4.3.2.1 气泡生成类型	127
4.3.2.2 气泡生成过程	130
4.3.2.3 气泡生成机理	133
4.3.2.4 气泡生成尺寸	146
4.3.2.5 气泡周围流场与形状的关系	149
4.3.2.6 结论	151
4.4 含突扩结构的微通道内气泡的聚并	152
4.4.1 牛顿流体中的聚并	152
4.4.1.1 在线两气泡之间的聚并	152
4.4.1.2 在线三气泡之间的聚并	154
4.4.2 非牛顿流体中的气泡聚并	155
4.4.2.1 在线两相等气泡之间的聚并	155
4.4.2.2 在线两不等气泡的聚并：小气泡追大气泡	158
4.4.2.3 平行两不等气泡的聚并	159
4.4.2.4 气泡聚并位置及概率	160
4.4.2.5 速度场分布	163
4.4.2.6 气泡聚并机理	164
4.4.3 结论	165
4.5 气泡在含有环形结构微通道内的流动行为	166
4.5.1 气泡在 T 分岔口不同行为	166
4.5.2 气泡破裂（对称）类型 I(BSI)	170
4.5.3 气泡破裂（对称）类型 II(BSII)	175

4.5.4 气泡破裂（对称）类型 III (BS III).....	183
4.5.5 非破裂类型(NB).....	185
4.5.6 各类型之间的转变	187
4.5.7 环路出口成对气泡的生成	188
4.5.8 结论	191
第五章 结论与展望	193
5.1 结论	193
5.2 展望	196
符号说明	198
参考文献	202
发表论文和参加科研情况	212
致 谢	213

前言

20 世纪 90 年代以来, 自然科学与工程技术发展的一个重要趋势是向微型化发展。随着微全分析系统 (μ -TAS)^[1]、微机电系统 (MEMS)、微流体 (microfluidics)^[2-7]、微系统 (microsystem)、芯片实验室 (lab on a chip)^[6]等概念的提出和发展, 微化工技术 (micro-chemical technology) 也成为化学工程学科新的发展方向之一^[8-10]。近十几年来, 微乳化 (micro-emulsification)^[11, 12]、微混合 (micro-mixer)^[7, 9]、微热 (micro-heating)^[13]、微反应 (micro-reaction)^[13, 14]、微分离、微分析系统^[1]等微化工技术^[4, 15]的研究处于迅猛的发展态势。召开了以“微反应技术 (Microreaction technology, 1997)”、“微通道和微小型通道 (International conference on microchannels and minichannels, 2003)”、“微流体学 (1st European conference on microfluidics, 2008)”等为主题的国际会议, 德国、美国、日本、法国、荷兰、英国和中国等国家的相关研究单位对微化工技术投入大量研究并取得了一定的成绩, 像 IMM、DUPONT、PNNL、BASF 等公司纷纷开展了微化工相关的研究^[16]。我国的“十一五”计划把微化工技术列为中国化学工业可持续发展的关键技术之一。

微流体是微化工技术研究的基础。微流体学也是一个非常新兴的研究领域。在微流体技术的研究和应用 (混合、反应、乳化、结晶和传质) 研究中, 多相流是基础。最常见的多相流是气液两相流或者液液两相流。目前, 两相流流型的研究还停留在实验阶段, 普适性的流型转变式以及流型转变的机理还有待进一步的研究。

气泡或液滴是多相微流体内重要的研究内容。研究气泡或者液滴的形成机理和流动特性, 有利于丰富微流体的理论基础, 为新的开发应用提供指导^[30-32]。

本文主要研究了不同类型微通道内气液两相流的流型特征以及气泡的生成机理: 考察了竖直矩形截面微通道内气液两相流的流型特征; 考察了连续相流体的物理性质 (粘度、表面张力、流变性质) 对气泡生成的影响; 考察了气泡在复杂微通道内的聚并和分裂行为。

第一章 文献综述

在“微化工技术”概念提出以及形成过程中，国内外许多化工界研究者在传统化工的基础上开展了一系列的基础研究和探索性的应用开发技术。在我国，中国科学院大连化学物理研究所自本世纪初开始，开展了微反应器的制备、微混合技术、微反应等微化工技术方面的研究^[8, 17, 18]，清华大学^[19-21]也相继开展了微萃取及微乳化等技术的相关系列基础研究。

微反应是微化工技术最早研究的内容之一，其基本思想就是在微通道中实现传统工业的生产过程。微反应器的特点主要体现在所需空间小、质量和能量消耗少、响应时间短、单位体积和单位时间内得到的信息量较大、成本低、生产灵活、生产能力的直接放大、和材料消耗低^[22]。不过也有明显的缺点：吨位数达不到传统石油化工的要求。

一些研究者提出了对微化工应用前景的设想——迷你工厂（miniplant）：迷你工厂（miniplant）由英国 Edinburg 大学的 Ponton^[23]首先提出。该研究者十分强调分散式生产过程装置，以利于过程的维护，提高过程的可靠性。迷你工厂的概念不是简单地将现有的工业反应器直接小型化，而是在这个基础上的一个变革，更要求发现新型实用的微反应器操作参数。迷你工厂要求得到的产品单一，或过程中的分离单元相对简单。该概念中既给出有化学品生产发展方法的一些设想，也给出了一些具体的指导原则，这两个方面的内容虽然均没有与微结构器件直接相关，但是它们对于将来微器件的发展是十分有利的。

目前，在微流体应用中，实现较大规模工业化生产的技术还比较有限，其中最为人们所了解的就是喷墨打印机技术^[24]。小规模的生产技术包括蛋白质结晶条件的筛选、高生产能力的药物开发筛选技术、以及单分子或者细胞实验和分析等^[3]。微流体芯片应用于许多功能元件中：微型阀、微型泵、微型激发器、微型开关、微型传感器、微型分散器、微型混合器、微型过滤器、微型分离器、微型传热器等^[6]。

基于微流体技术发展的微流控芯片装置具有可控性的特点，一些研究者开展了在微通道内乳化及多重乳化的研究。研究结果表

明，微芯片装置内的乳化过程是可控的，而且液滴的直径呈现较高的均一性。通过控制气液或者液液两相流的流量、流体的表面张力和粘度、微通道的尺寸能达到目标乳化尺寸的目的^[20, 25]。有些研究者通过外场的加入或者微通道的设计，更好地控制微液滴的行为（droplet management）：水/油/水或油/水/油（W/O/W, O/W/O）或者双液滴（pair droplets），拓展了微乳化的应用范围。但是目前的研究集中在实验探索阶段，理论研究还有待进一步的加强^[26-29]。

对于微通道内的气液或液液两相流流型，其特征与常规尺度内的有区别，最主要的是分层流在众多的微过程中并没有出现；流型的转变不能用传统尺寸管道内的流型判别式来预测；流型的转变受流体流量、流体的粘度和表面张力、流体驱动方式、气液进口结构和尺寸、装置材料及表面性质等的影响。

气泡和液滴是微流体中重要的研究内容。在加强传质研究中，液弹中的漩涡是增强传质的原因之一。弹状流也可以用来增强混合效应，减弱分散。微通道内气液弹状流的良好可控性及潜在的应用前景，吸引了一些研究者。

本章综述了微流体内的气-液两相流流型特征、微通道内气泡（液滴）的生成机理和运动特性以及应用于微流体的粒子成像测速仪技术。

1.1 微通道内气液两相流流型研究

气液两相流流型是传热传质研究的基础，微通道由于其尺度的微小化，可观察到的流型与常规尺度下的有一定的区别。由于研究者们用的微通道尺寸、气液介质、微通道材质、流体进口方式等的不同，观察到的流型也有一定的区别。表 1-1 是已报道的微通道内气液两相流流型特征^[33-45]。

Serizawa 等^[35]观测到的流型为：分散的泡状流（dispersed bubbly flow）、弹状流（slug flow）、液环流（liquid ring flow）、液团流（liquid lump flow）。分散的泡状流中的气泡在直径小于微通道直径情况下，总是保持球形，用 Laplace-Young 方程估算的气液界面压力差为 0.3 bar,这个压力差足以维持气泡为球形，并阻止气泡被扭曲变形。弹状流通常发生在微通道的入口段。液环流的特征结构是微通道壁面的液膜对称分布，常规管道中不发生液环流。当气

体流速很大，以至于高速的气核夹带液体的时候，顺着微通道壁就发生液团流现象，它的形状与水平大管道内的波形流（wavy flow）形状相似。该实验观察到一个独特的流型：歪斜肉串流（skewed flow or Yakitori flow），即不同形状的气泡通过微通道中轴上的气核连成一串，就象歪斜的烤鸡肉串一样。

Triplett 等^[46]实验观察到泡状流（bubbly flow）、翻腾流（churn flow）、弹状流（slug flow）、弹状—环状流（slug-annular flow）和环状流（annular flow），将流型图与流型转变模型和关联式计算得出的结果比较，发现现有的关联式不适用于微通道内气液两相流。

Chen 等^[36]与 Triplett 等^[46]得到的结论不同之处在于没有观察到弹状—环状流（slug-annular flow），而观察到了成串泡状—弹状流（bubble-train slug flow），即几个或十几个气泡依靠液膜连在一起形成成串气泡，与 Serizawa 等^[35]观察到的歪斜肉串流（skewed flow or Yakitori flow）现象相似，Chen 等^[36]把这种流型的出现归因于微通道内表面张力要远大于浮力的作用，研究表明成串气泡的个数呈随机性，在低的气体表观速度下，气泡数目的分布与液体的表观速度有关，大的液流速度将导致成串气泡的气泡个数的减少；发现气泡速度与毛细管数有关，也与液体表观速度有关。对于不同的流型，气泡速度、空隙率可以用修正的漂流通量模型（drift flux model）进行关联，而均相流模型（homogeneous flow model）预测的结果与实验值相差很多。

Kawahara 等^[37]发现在微通道内没有出现泡状流（bubbly flow）和分层流（stratified flow）。由于测定的流型不同于常规流型，没有现成的流型图可以借鉴，根据观察到的五种流型出现的概率和时均空隙率的不同定义了四种新的流型区：弹状—环状流（slug-ring flow）、环状—弹状流（ring-slug flow）、半—环状流（semi-annular flow）和多相流。首次报道了高气、液速度下微通道内的多相流现象。Kawahara 等^[37]认为没有出现泡状流的原因可能是微通道内液体呈现出来的层流性质。

Cubaud 等^[47]研究发现微通道内流体受表面张力的影响很大，气液两相流的流型不依赖于微通道的尺寸，这与当量直径大于 1 mm 通道内的情况不同。用液含率（liquid fraction）的函数预测相邻两流型之间的转变线。研究了微通道的润湿性对流型的影响；通过研究测试段之前的混合段发现，气液经过混合后得到单一分散的气

泡。

Akbar 等^[34]通过收集和比较报道的流型数据，作出以 Weber 数为基准的流型图，并将微通道内气液两相流的流型分为四个区域：表面张力主导区域，包括：泡状流、气弹及液弹流；惯性力主导区 I，包括环状流和波状-环状流；惯性力主导区 II，包括分散的流型；以及转变区域。

Waelchli 等^[40]研究了截面为矩形的硅微通道内的气液两相流，考察了气液表观速度、微通道的结构以及流体的性质对流型的影响，通过无量纲分析，作出了一个普适性的流型图。该流型图能在一定的程度上预测流型。

表 1-1 微通道内气液两相流流型研究

Table 1-1 Studies on the gas-liquid two-phase flow in microchannels

研究者 (年份)	流体方向	微装置	流体	流型	备注
Coleman 等 ^[33] (1999)	水平	耐热玻璃, 1.3 – 5.5 mm, 圆形和矩形	空气-水	泡状流、分散流、拉长泡状、弹状流、 分层流、波状流、环状-波状流、环状 流	有分层流
Waelchli 等 ^[40] (2006)	水平	硅, 187.5-218 μm , 矩形	氮气-水、乙醇、甘油 (10%、20%)	泡状流、弹状流、弹状-环状流、环状 流	没有分层流
Ide 等 ^[48] (2007)	水平, 竖直 (向上、向 下)	1-4.9 mm, 圆形; 矩形	空气-水	—	没有分层流
Weinmueller 等 ^[44] (2009)	水平	硅, 200 μm , 正方形	CO ₂ -甲醇-水混合物	泡状流、楔状流、弹状流、环状流	没有分层流
Liu 等 ^[39] (2005)	竖直(向上)	PVC, 0.9- 3 mm, 圆形和 正方形	空气-水、乙醇、油	泡状流、泡状-弹状流、弹状流、翻腾 流	没有分层流
Sobierska 等 ^[51] (2006)	竖直(向上)	铜-玻璃, 0.86 \times 2.0 mm (宽 \times 深), 矩形	蒸汽-沸腾水	泡状流、弹状流、环状流	没有分层流
Fu 等 ^[52] (2008)	竖直(向上)	不锈钢-玻璃, 1.931 mm, 圆形	沸腾的液弹	泡状流、弹状流、翻腾流、环状流	没有分层流
Liu 等 ^[42] (2008)	竖直(向上)	石英-玻璃, 1.47, 2.37 and 3.04 mm, 圆形	水-空气	泡状流、弹状流、成串泡状弹状流、 翻腾流、环状流	没有分层流
Biswas 等 ^[49] (1985)	竖直(向下)	玻璃, < 3 mm, 圆形	空气-水、蒸馏水	分层流、分散泡状流、弹状流、环状 流	有分层流
Galbiati 等 ^[50] (1992)	竖直(向下)	玻璃, 0.5 -2 mm, 圆形	空气-水	弹状流、环状流、分层流	有分层流
Steinbrenner ^[41] (2007)	水平	硅, 500 \times 45 μm , 矩形	空气-水	—	有分层流

Lee 等 ^[43] (2008)	水平	玻璃, 1.46 and 1.80mm, 圆形	空气-水、甲醇	弹状流、弹状-环状流、环状流、分层流 (波状)	有分层流
Li 等 ^[53] (2005)	水平	56 μm ; 梯形;	蒸汽-水	气泡流; 波状流; 环状流	没有分层流
Yen 等 ^[54] (2006)	水平	210 μm , 圆形; 214 μm , 方形; 耐热玻璃	氮气-HCFC123	泡状流、活塞流、环状流、毛细管流	没有分层流
Zhao 等 ^[38] (2001)	竖直(向上)	886 μm ; 三角形;	空气-水	毛细泡状流、弹状流、翻腾流、环状流	没有分层流
Fu 等 ^[55] (2005)	水平	132.7 μm ;	H ₂ SO ₄ , NaHCO ₃ -CO ₂	泡状流、弹状流	研究反应对这两个流型转换的影响
Triplett 等 ^[46] (1999)	水平	1.1 mm, 圆形; 1.09 mm, 半三角形	空气-去离子水	泡状流、翻腾流、弹状流、弹状-环状流和环状流	没有分层流
Cubaud 等 ^[47] (2006)	水平	200 μm ; 525 μm ; 方形	空气-水	泡状流、楔状流、弹状流、环状流和干燥流	微通道呈 90 度角折叠; 没有分层流
Chen 等 ^[36] (2002)	水平	1.00-1.50 mm; 圆形; 玻璃	氮气-水	泡状流、弹状流、成串泡状-弹状流、翻腾流和环状流	没有弹状-环状流; 没有分层流
Kawahara 等 ^[37] (2002)	水平	100 μm ; 圆形; 熔融石英	氮气-去离子水	纯液体流 (或液体弹状流), 液膜薄而光滑的气核流, 液膜厚而光滑的气核流, 液膜为环状的气核流, 变形界面的气核流	没有泡状流和分层流
Serizawa 等 ^[35] (2002)	水平	25 μm ; 圆形; 硅管	空气-水	分散的泡状流、弹状流、液环流、液团流	没有分层流
		50 μm ; 圆形; 硅管	蒸汽-水	与 25 μm 管内相似, 并发现了液滴流	没有分层流
		100 μm ; 圆形; 石英管	空气-水	与 25 μm 管内相似, 发现独特流型: 歪斜肉串流	没有分层流

Ide 等^[48]研究了内径为 1-4.9 mm 的圆形截面和深宽比为 1-9 的矩形截面的微通道内的空气—水两相流。研究表明，当量直径小于 5mm 时，毛细管力占主导地位，而流型受流体流动方向（水平或者竖直）的影响不大。

Lee 等^[43]研究了微通道的表面润湿性对内径为 1.46-1.80mm 的圆形截面微通道内气液两相流流型转变的影响，并提出了一个考虑了微通道表面润湿性的普适性流型图。

Weinmueller 等^[44]用激光诱导荧光显微镜研究了深度为 200 μm 的正方形硅质微通道内两相流流型，研究发现在低气液表观速度条件下，小尺寸管道和低的流体表面张力加速气泡的形成。

Shao 等^[45]综述了微通道内气液两相流的流型特性，并讨论了影响流型转变的因素。微通道的尺寸、气液表观速度、液体的表面张力、壁面润湿性以及进口条件对流型转变起主要作用。对流型转变的影响其次是管道截面的结构。液体的粘度和管道的放置方式似乎也起一定的作用。目前，普适性的流型图并不存在，而且已见报道的实验条件不尽相同。

在工业中，竖直管道内的两相流应用也比较广泛^[17]。一些研究者研究了竖直微通道内的气液两相流^[38, 39, 42, 49-52]。

Zhao 等^[38]研究了水力学直径范围为 0.866-2.866 mm 的三角形截面的竖直微通道内空气—水两相流的流型。在 886 μm 的竖直微通道内并没有发现分散的泡状流。发现随着水力学直径的减小，弹状流/翻腾流以及翻腾流/环状流的流型转变线向右移。

Liu 等^[39]研究了当量直径范围为 0.9-3 mm 的竖直毛细管内的气液两相流流型，观测到的流型为：泡状流、弹状-泡状流、弹状流以及翻腾流。环状流只出现在低液速高气液液的条件条件下。

Sobierska 等^[51]观测了竖直矩形微通道内的两相流：泡状流、弹状流和环状流。

Fu 等^[52]研究了内径为 1.931 mm 的竖直圆管内的沸腾液氮与其蒸汽的流型，观测到的流型：泡状流、弹状流、翻腾流和环状流。研究表明接触角对流型转变的影响比较大，特别是对泡状/弹状流的转变。

Liu 等^[42]研究了内径为 1.47, 2.37 和 3.04 mm 的竖直毛细管内的空气-水两相流，观测到的流型为：泡状流、弹状流、成串的泡状弹状流、翻腾流以及环状流。将流型转变的实验值与传统的流型转

变准则作了比较，结果表明，传统的流型转变标准并不能预测实验数据。

上面提到的已报道的研究中，都没有报道分层流。Biswas 等^[49]报道了表面张力占主导的毛细管内（内径小于 3 mm）并流向下的气液两相流中出现的分层流，认为分层流由表面张力引起。Galbiati 等^[50]认为竖直向下毛细管内两相流中分层流的出现是一种不稳定的流型，进口混合效应和发展段长度对毛细管内分层流的出现有很重要的影响。他们在短发展段（ $L/D = 350$ ）的“Y型”混合器内进行了实验，发现弹状流在发展段以后（ $L > 350 D$ ）出现。Steinbrenner 等^[41]在水平的矩形截面（ $500 \times 45 \mu\text{m}$ ）微通道内也观测到了分层流。

总之，微通道内气液两相流主要受表面张力、粘性力等的影响，与常规尺度下的气液流体特征有很大的区别。微通道内气液两相流因为气液介质、微通道尺寸、气液流速、气液接触方式、微通道的壁面性质和流体的流动方向等的不同，表现出来的流型也有区别，目前还没有普适性的流型转变准则和流型图。传统的流型判别准则对微通道内气液两相流流型失效。

1.2 微通道内气泡（液滴）行为研究

1.2.1 气泡（液滴）的生成

气泡和液滴是微流体应用的基础，在微通道内气泡和液滴的生成机理比较复杂，吸引了许多学者。总的来讲，常见的气泡或液滴的发生器可以分为三类（图 1-1）：错流接触的 T 型微通道（图 1-1a）：通常分散相由竖直旁路管道引入，而连续相由主管道引入，并从主管道下流流出；对流接触的 T 型或 Y 型微通道装置（图 1-1b-c）：通常分散相和连续相均由两旁路管道引入，并由主管道流出；聚焦流十字型微通道（图 1-1d）：通常分散相由中间的主管道引入，连续相由两旁路管道夹流引入，混合流体由主管道下流流出。图 1-1 中 Q_d 表示分散相的流量， Q_c 表示连续相的流量。

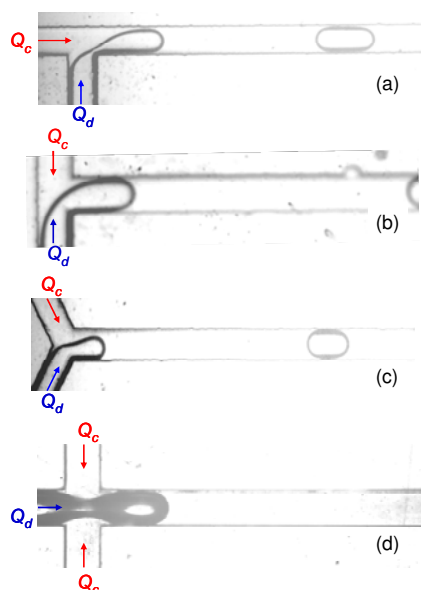


图 1-1 三种常见的气泡（液滴）生成结构图

Fig. 1-1 Three popular microfluidic generators for bubbles or droplets: (a) cross-flowing T-junction; (b)-(c) opposite-flowing T- or Y-junctions; (d) flow-focusing devices

一些无量纲指数常用来比较微通道中气泡（液滴）生成过程中各个力以及参数的大小。下面简单介绍这些无量纲指数。

毛细管数 Ca 在微流体中常用到，它表示粘性力与毛细管力（压力）的比值：

$$Ca = \frac{\mu_c u_c}{\sigma} \quad (1-1)$$

μ_c 为连续相的粘度， σ 为连续相和分散相的界面张力， u_c 是连续相的流速。在微通道内气泡或者液滴的生成过程中，毛细管数的范围通常为 $Ca \in (10^{-3}, 10)$ 。

分散相与连续相流量比 φ ：

$$\varphi = Q_d / Q_c \quad (1-2)$$

粘度比 λ ：

$$\lambda = \mu_d / \mu_c \quad (1-3)$$

雷诺数 Re 表示惯性力与粘性力的比值：

$$Re = \frac{\rho u D_H}{\mu} = \frac{2\rho_i Q_i}{\mu_i (w_i + h_i)} \quad (1-4)$$

u 为特征速度, D_H 为微通道截面的当量直径, 下标“i”表示要考察的相, 即连续相或分散相。

韦伯数 We 表示惯性力与表面张力的比值。它通常在惯性力与表面张力比粘性力更重要的情况下使用。它为雷诺数 Re 与毛细管数 Ca 的乘积:

$$We = ReCa \quad (1-5)$$

一般来说, 在微流体中, 惯性力是相对黏性力和表面张力来说不太重要的力^[3]。但是, 惯性力也确实影响微通道内气泡夹断过程以及高流速下的气泡生成过程^[56-58]。

Bond 数 Bo 表示浮力与表面张力的比值:

$$Bo = \frac{(\rho_c - \rho_d)gw_c^2}{\sigma} \quad (1-6)$$

ρ_c 、 ρ_d 分别表示连续相和分散相的密度; g 表示重力加速度。气泡在液相流体中的生成中, 如果微通道的尺寸为 $w_c = 100 \mu\text{m}$, $Bo \sim 10^{-3}$ 。对于液液两相流, 密度差很小, 所以 Bo 数通常在 10^{-6} 数量级, 浮力就可以忽略。下面本文按微通道的结构综述气泡(液滴)的研究现状。

1.2.1.1 气泡(液滴)在错流接触 T 型微通道内的生成

连续相以错流的方式与分散相接触并使之破裂是气泡或者液滴最常见的一种生成方式(图 1-1a)。最先将这种微通道用于液滴的生成的研究者是 Thorsen 等^[59]。Thorsen 等^[59]用压力驱动流体进入微通道(35 μm 宽, 6.5 μm 深), 在不同的油相中生成水滴。研究表明, 当连续相和分散相的驱动压力接近时, 生成液滴的尺寸随着分散相的增加而增加; 当两相压力相差太大时, 不能生成液滴。Thorsen 等^[59]认为当黏性力大于界面张力的时候(或者 $Ca \sim 1$), 液滴头将脱离分散相, 形成液滴, 并提出了一个预测液滴直径的表达式:

$$d \propto \frac{2\sigma}{\mu_c \dot{\gamma}} \quad (1-7)$$

其中 $\dot{\gamma}$ 是汇合处的剪切力。尽管剪切力需要用经验的方法得到, 而且剪切力和连续相、分散相驱动压力的关系不清楚, 这个简单的

关系式还是可以预测实验中包括两个数量级的液滴尺寸。随后，一些研究者相继研究了 T 型微通道内气泡或者液滴的生成^[21, 60-69]。

目前主要将气泡或者液滴的生成机理分为：

被约束 (confined) 的分散相破裂方式：刚生成的气泡 (液滴) 头很快填满两相接触区域，并在出口管道中继续发展，其发展过程受管道的结构和尺寸影响。这种生成过程中，发展中的分散相头部阻挡了连续相流体，使其只能在分散相与壁面之间的薄膜层流动。这种阻碍使连续相上游的压力增加，驱动两相界面向下游发展，并最终夹断分散相头部使之脱离，生成气泡 (液滴)，这种压力也称为夹断压力 (pinching pressure)^[65]。这种区域也称为挤压区 (squeezing regime)^[68, 69]。一般发生在 $Ca < 0.002$ ^[68]。这种生成机理产生的气泡 (液滴)，主要由分散相与连续相的流量比控制^[65]。

未被约束 (unconfined) 的分散相破裂方式：刚生成的气泡 (液滴) 头不与主管道的壁面接触，整个生成过程不与主管道的壁面接触，分散相头部对连续相的流量不产生大的影响，生成的气泡 (液滴) 的尺寸主要由局部的剪切力 (毛细管数 Ca) 控制^[68, 69]。这种机理生成气泡 (液滴) 的区域称为滴状区 (dripping regime)，一般发生在 $0.01 < Ca < 0.3$ ^[68]。这种情况一般发生在连续相比分散相管道尺寸大很多的情况下。

两种破裂方式之间的区域：生成机理介于前两种之间，称为转变区 (transition regime)^[68, 69]，一般发生在 $0.002 < Ca < 0.01$ ^[68]。这种机理生成的气泡 (液滴)，主要由分散相与连续相的流量比和毛细管数共同控制^[61, 62, 68, 69]。通常来讲，许多微通道内生成的气泡 (液滴) 是由这种方式产生的。

下面介绍这三个区域内的生成机理，并考察粘度比对生成气泡 (液滴) 的影响。

1 被约束 (confined) 分散相 (气泡或者液滴) 的破裂方式

这种方式生成的气泡 (液滴) 一般为弹状。

Garstecki 等^[65]认为在低毛细管数 Ca 情况下，分散相头部堵塞了下游管道，这样导致了分散相头部与壁面之间的阻力突增。这种积压驱动分散相头部向下游发展，并最后使其夹断，生成气泡 (液滴)。由积压而产生的力 F_p 与膜厚 ε (分散相头部与壁面之间的薄膜)

之间的关系为：

$$F_p \approx \frac{\mu_c Q_c w_c}{h^2 \varepsilon^3} \quad (1-8)$$

Q_c 为连续相的流量， w_c 为下游管道的宽度， h 为下游管道的厚度。

黏性力 F_τ 可以表示为：

$$F_\tau \approx \frac{\mu_c Q_c w_c}{\varepsilon^2} \quad (1-9)$$

界面张力表示为：

$$F_\sigma \approx -\sigma h \quad (1-10)$$

随着气泡（液滴）的长大，膜厚 ε 变小，挤压力和黏性力都变大，但是，从上面的表达式可以看出，当膜厚 ε 很小时，挤压力比黏性力大很多，是驱动分散相头部继续发展并最终使之夹断脱离的主要力。

刚开始的时候，分散相头部发展到堵塞主管道，此时，分散相头部的长度大约等于管道的宽度 w_c 。随后，挤压力开始驱动分散相头部发展，并以一定的速度挤压分散相颈部，该速度约等于连续相速度，即：

$$u_{squeeze} \approx u_c = \frac{Q_c}{hw_c} \quad (1-11)$$

而分散相头部以分散相速度发展，即：

$$u_{growth} \approx u_d = \frac{Q_d}{hw_c} \quad (1-12)$$

这样，最后被夹断脱离的气泡（液滴）的尺寸为：

$$L \approx w_c + (d/u_{squeeze})u_{growth} = w_c + dQ_d/Q_c \quad (1-13)$$

无量纲化后变为：

$$\frac{L}{w_c} = 1 + \alpha \frac{Q_d}{Q_c} \quad (1-14)$$

其中 d 为分散相颈部的宽度，与微通道的 T 型接触处的结构和尺寸有关，称为特征宽度。 $\alpha = d/w_c$ ，是一个特征常数，与微通道的结构和尺寸有关。

Garstecki 等^[65]认为式 1-14 适用于引入分散相管道的宽度比引入连续相管道的宽度的一半大的时候。如果分散相管道的宽度太小，局部剪切力将对气泡（液滴）的生成产生影响。de Menech 等^[69]通过数值模拟方法，得出这个式子在非常小的毛细管数 Ca （ $Ca \ll 1$ ）时候适用。Xu 等^[68]通过文献数据归类的方法，得出这个式子的适用范围是 $Ca < 0.002$ 。van Steijn 等^[70]用 micro-PIV 实时测量了 T 型微通道内气泡生成过程中周围流体受阻的情况。

Van de Graaf 等^[64]用格子玻尔兹曼（lattice Boltzmann method, LBM）模拟了液滴在 T 型微通道内的生成过程，并用实验进行了验证。他们用“两步法（two-step process）”模型将液滴生成过程分为两个部分：第一个部分，从开始至界面受力平衡时，液滴生长至一个临界体积 V_g ；然后，由于分散相的连续供给，液滴继续生长 t_c 时间段，直到被夹断，所以最后生成的液滴的体积为：

$$V = V_g + t_c Q_d \quad (1-15)$$

而且，Van de Graaf 等^[64]还用模拟的方法发现，液滴的体积随着毛细管数 Ca 的增加而减小，而随着分散相流量的增加而略有增加。所以，在此基础上，他们又提出了一个经验式：

$$V = V_{g,ref} Ca^m + t_{c,ref} Ca^n Q_d \quad (1-16)$$

根据模拟结果， $V_{g,ref}$ 和 $t_{c,ref}$ 取 $Ca=1$ 时的值。 m, n 是常数，与微通道的结构和尺寸有关。van de Graaf 等^[64]发现在 $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ 的 T 型微通道内， $V_{g,ref} = 2.5 \times 10^{-5} \mu\text{L}$ ， $t_{c,ref} = 135 \mu\text{s}$ ， $m = n = -0.75$ 。这个经验式既能用于挤压区，又能用于滴状区。

Steegmans 等^[60]运用“两步法”模型 (basic two-step droplet formation model)，用统计学方法整理文献里出现的数据。基本步骤同 Van de Graaf 等^[64]。Steegmans 等^[60]提出的基本表达式为：

$$r_{3D} = \left(r_g^3 + \frac{3}{4\pi} t_c Q_d \right)^{1/3} \quad (1-17)$$

r_{3D} 是与生成液滴体积相等的球形半径，称为当量半径； r_g 是生长阶段的最终半径，从这以后，脱离阶段开始； t_c 是夹断脱离阶段的时间。当液滴以很快的速度夹断脱离时， t_c 很小， r_g 就非常接近 r_{3D} 。

对于弹状液滴，Steegmans 等^[60]用下面的式子来计算当量直径：

$$r_{3D} = \left(\frac{\pi \cdot L/2 \cdot w_c/2 \cdot h}{4/3 \cdot \pi} \right)^{1/3} = 0.572(w_c L h)^{1/3} \quad (1-18)$$

Steegmans 等^[60]研究表明,“两步法”能用于文献中已报道的液滴(弹状、圆盘状、滴状)。液滴生长阶段体积由通道的尺寸决定;而脱离时间由两相流量控制。

2 未被约束(unconfined)分散相(气泡或者液滴)的破裂方式

一些研究者在引入连续相流体管道远大于引入分散相流体管道的微通道内研究了液滴的生成^[66]。Xu 等^[67]实验中的微通道结构为:引入分散相管道为 45 μm 矩形管道,而引入连续相管道为 1 mm 矩形腔,研究表明生成液滴的体积随着连续相流量的增大而减小,而随分散相流量的变化不大。一些研究者考察了流体的粘度^[21, 66]以及流体的表面张力^[20, 67]对气泡或液滴生成的影响。

Husny 等^[66]通过受力分析的方法,建立了液滴生成的模型。他们认为,液滴的脱离时刻发生在连续流体对分散相头部的曳力正好等于抵抗形变的表面张力。由于雷诺数比较小,分散相的头部受到的曳力在斯托克斯区。分散相头部在连续相中的膨胀和运动导致连续相产生局部的惯性力也加速分散相头部的脱离。阻止气泡脱离的力为表面张力。通过静力学分析得到了液滴生成的尺寸,结果表明液滴的生成尺寸与毛细管数 Ca 有关,与两相流量比 φ 、粘度比 λ 无关。这个简单的模型能在一定的毛细管数 Ca 范围内 ($Ca < 0.8$) 很好的预测生成液滴的尺寸。

Xu 等^[67]认为浮力和动态向上的举力也应该包括在受力分析内,因为他们实验中的雷诺数 Re 比一般的微通道中流体的雷诺数要大得多。最后得到的液滴生成尺寸与雷诺数、毛细管数和 Bond 数有关。其结果在较大表面张力的情况能很好得预测实验值,但是在低表面张力情况下,预测值比实验值要小。Xu 等^[67]认为这是由于小的表面张力情况下,延长了脱离时间,而导致实验值比预测值要大。

一些研究者也在引入分散相和连续相管道接近的情况研究滴状区(dripping regime)内生成气泡(液滴)的情况。

De Menech 等^[69]通过数值模拟得出:

$$\bar{d} = \frac{d}{w_d} \approx \frac{1}{(\dot{\gamma}_d Ca)^{0.4}} \quad (1-19)$$

其中 $\dot{\gamma}_d$ 表示液滴头部与墙壁之间空间内的剪切速率 $\dot{\gamma}$ 与整个主管道的剪切速率 u_c/w_c 的比值。式 1-19 表明液滴增长速度比式 1-7 预测的要慢得多。这也说明除非液滴尺寸比通道宽度小很多，否则，额外的力（挤压力）对滴状区（dripping regime）内液滴的生成过程不容忽视。两种不同的机理共同作用，使预测液滴尺寸模型变得更加困难。

Xu 等^[68]在式 1-7 的基础上，重新计算了连续相在分散相头部与壁面之间空间内的速度，得出新的关联式：

$$\bar{d} = \frac{d}{D_H} \approx \frac{1}{Ca} \cdot \frac{w_c h - 0.785d^2}{w_c h} \quad (1-20)$$

3 转变区域内的气泡（液滴）破裂行为

在这个区域，气泡（液滴）的生成由以上两种机理共同作用，这就增加了建立模型的难度。

Christopher 等^[62]在 Garstecki 等^[65]的工作基础上，对图 1-2 所示的微通道结构中生成的液滴达到生长阶段最大体积时刻，进行静力学分析；然后对夹断阶段进行分析，得出最终的体积表达式。

表面张力为：

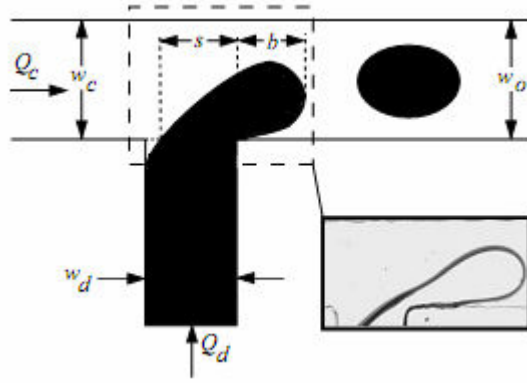
$$F_\sigma \approx \left[-\sigma \left(\frac{2}{b} + \frac{2}{h} \right) + \sigma \left(\frac{1}{b} + \frac{2}{h} \right) \right] bh = -\sigma h \quad (1-21)$$

黏性力为：

$$F_\tau \approx \mu_c \frac{u_{gap}}{(w_c - b)} bh \approx \mu_c \frac{Q_c}{h(w_c - b)^2} bh \approx \frac{\mu_c Q_c b}{(w_c - b)^2} \quad (1-22)$$

挤压力为：

$$F_p \approx \Delta p_c bh \approx \frac{\mu_c u_{gap}}{(w_c - b)} \cdot \frac{b}{(w_c - b)} bh \approx \frac{\mu_c Q_c b^2}{(w_c - b)^3} \quad (1-23)$$

图 1-2 Christopher 等^[62]实验及模型示意图Fig. 1-2 Sketch for droplet thread generated in a T-junction by Christopher *et al.* ^[62]

在转变区， $b < w_c$ ，因为液滴头部没有填满微通道。当液滴头部要开始进入夹断阶段，但是还没有进入的时候，达到了静力学平衡，以上三个式子总和为零。整理后得到：

$$(1 - \bar{b})^3 = \bar{b} \times Ca \quad (1-24)$$

其中， $\bar{b} = b/w_c$ ，从上式可以看出，液滴在第一阶段的终体积与毛细管数 Ca 有关。

然后，类似 Garstecki 等^[65]的分析，在夹断阶段，液滴颈部的夹断速度由连续相控制： $u_{squeeze} \approx u_c = Q_c/hw_c$ ，则夹断时间为 $t_{squeeze} \approx w_d/u_{squeeze}$ ；而分散相液滴头部的生长速度则由分散相的速度控制，即 $u_{growth} \approx Q_d/bh = u_d w_d h/bh = u_d \Lambda/\bar{b}$ 。最后生成的液滴的长度为：

$$L = b + u_{growth} \cdot t_{squeeze} = b + (u_d \Lambda/\bar{b}) \cdot (w_d/u_{squeeze}) = b + (\Lambda/\bar{b}) \cdot (w_d u_d/u_c) \quad (1-25)$$

则无量纲化长度为 $\bar{L} = L/w_c$ ：

$$\bar{L} \approx \bar{b} + \frac{\Lambda}{\bar{b}} \varphi \quad (1-26)$$

式 1-26 与式 1-14 类似，只是在 Garstecki 等^[65]导出的式 1-14 中， $\bar{b} = 1$ ，而且常数 α 代替了式 1-26 中的宽度比 $\Lambda = w_d/w_c$ 。

液滴的无量纲体积为：

$$\bar{V} = \frac{V}{w_c^2 h} \approx \frac{Lbh}{w_c^2 h} \approx \bar{L} \cdot \bar{b} \approx \bar{b}^2 + \Lambda \varphi \quad (1-27)$$

这样，先用式 1-24 计算出 b ，然后用式 1-26，1-27 计算出液滴的长度和体积。该模型表明生成液滴的体积由毛细管数 Ca 和两相流量比 ϕ 决定，而且，作为微通道结构参数 Λ （引入分散相管道与引入连续相管道的宽度比）也是影响液滴体积的一个因素。

Xu 等^[68]认为在这个区域，液滴的生成既受毛细管数 Ca 的影响，又受两相流量比 ϕ 的影响，提出了一个关联式，并用他们已经发表的数据进行了拟合，得到以下结果：

$$\bar{L} = \frac{L}{w_c} = 0.75\phi^{1/3}Ca^{-1/5} \quad (1-28)$$

de Menech 等^[69]通过实验模拟的手段考察了转变区域的压力的波动，发现在该区域内液滴的生成受剪切力和挤压力共同作用。

通过以上的分析表明，现阶段，转变区域内生成气泡（液滴）的实验数据很有限，还需要大量的数据来考证已经有的生成模型，或者提出新的模型。

4 粘度比的影响

以上综述的模型中，很少有涉及到粘度比 λ 。不过一些研究者实验研究了粘度比对气泡（液滴）生成的影响。

液滴生成过程。对于滴状区（**dripping regime**），即未被约束的液滴生成过程，研究表明在给定的流量下，液滴的体积随着连续相流体的粘度的增加而减小^[20, 66]。因为在相同的流量下，粘度越大粘性曳力越大，加速了液滴的夹断脱离过程；对于挤压区（**squeezing regime**）生成的液滴，其长度与流体的粘度无关^[65]；对于过渡区（**transition regime**）生成的液滴，一些研究者实验发现只有当两相粘度比较接近的时候，液滴生成才与粘度比有关；如果分散相粘度比连续相的粘度小 50 倍以上，生成液滴的尺寸就与粘度比无关^[62]。de Menech 等^[69]模拟结果表明，粘度比对液滴生成的第一阶段形成的形状有关。一些研究者还发现，分散相的粘度对流型转变时的临界毛细管数有关，随着粘度比的增加，临界毛细管数减小，因为分散相粘度的增加，增强了两相界面的稳定性^[71, 72]。

气泡生成过程。粘度比很小，一些研究者也研究了连续相粘度对气泡生成的影响^[19, 65]。结果与液滴生成过程类似。只是对于气泡生成过程，在受约束情况下，当气液流量比增大时，预测的气泡

长度比实验值要小。Garstecki 等^[65]认为这是由于气泡的存在，相对于液滴来说，阻力变小，积压变小，小的挤压力导致较长的夹断脱离时间，有更多的分散相气体进入气体头部，最后生成的气泡就比较大。

1.2.1.2 气泡（液滴）在对流接触 T 或 Y 型微通道内的生成

这种类型的微通道通常用于多相的混合，而生成气泡（液滴）的研究不是很多。不过现有的研究有提出物理模型，有实验研究，也有数值模拟。

(1) 物理模型：Steegmans 等^[60]提出的“两步法模型”也可以用于这种结构生成的气泡（液滴）。对于 Y 型微通道（约 23 μm 宽, 5 μm 深，两臂夹角为 97°）内单一液滴的生成，Steegmans 等^[73]认为夹断脱离阶段非常快，对液滴体积贡献不大，所以液滴生成过程的第一阶段即“生长期”决定生成液滴的体积。根据力平衡原则提出“一步法模型”。假设分散相颈部的直径与微通道的深度 h 相等，分散相头部呈圆球形，黏性曳力按低雷诺数时的情况计算。在分散相头部脱离时刻，表面张力和黏性力正好相等：

$$F_{\sigma} = \left(2h + \frac{1}{2}\pi h \right) \sigma \quad (1-29)$$

$$F_{\tau} = kC_D u \approx 8.01d^2 \left(\frac{8u_c \mu_c}{D_H} \right) \quad (1-30)$$

其中， $u_c = Q_c/h(w_c - 0.89h)$ ， $D_H = 4h(w_c - 0.89h)/1.57h + 2w_c$ 。 $k=1.7$ ，是一个与壁面有关的关联参数， C_D 为曳力系数， u 为流体速度， u_c 是连续相的平均速度， D_H 为流体流过分散相颈部部分的当量直径。 w_c 是主管道的宽度。上两式相等得到生成液滴的直径为：

$$d = \sqrt{\frac{h^2(w_c - 0.89h)}{4.49(1.57h + 2w_c)}} Ca^{-1/2} \quad (1-31)$$

上式表明在 Y 型微通道内生成单一液滴的尺寸随着连续相流量和粘度的增加、表面张力的减小而减小。

(2) 实验研究：Zhao 等^[74]实验研究了对流 T 型微通道内液滴的生成，并用回归的方法得到液滴体积与韦伯数 We 的关系为：

$$\frac{d}{D_H} = -0.1276 \ln \left[\frac{We_c \left(1 - \left(\frac{Q_d}{Q_d + Q_c} \right) \right)}{\left(We_d \left(\frac{Q_d}{Q_d + Q_c} \right) \right)^{0.15}} \right] + 0.5595 \quad (1-32)$$

(3) 模拟研究: Qian 等^[75]数值模拟了 T 型微管道内弹状气泡的生成过程, 并考察了操作参数 (如连续相表面张力和粘度、进口结构和尺寸、气液流量、微通道的壁面亲水性等) 对生成的气泡尺寸的影响, 最后归纳出气泡长度的关联式为:

$$\frac{L}{D_H} = 1.637 \left(\frac{Q_d}{Q_d + Q_c} \right)^{0.107} \left(1 - \frac{Q_d}{Q_d + Q_c} \right)^{-1.05} Re^{-0.075} Ca^{-0.0687} \quad (1-33)$$

1.2.1.3 气泡 (液滴) 在聚焦流十字型微通道内的生成

1 气泡的生成

典型的聚焦流十字型微通道可以分成三种类型 (图 1-3): (I) 毛细管聚焦型, 气相被同向的液相流体聚焦流动^[76, 77]; (II) 聚焦十字型连接处与宽大的出口之间由一个小而短的孔连接^[56-58, 78, 79]; (III) 聚焦十字型连接处的尺寸与出口的尺寸一样^[80-83]。这三种不同的装置中, 气液两相流体的流量对气泡生成过程具有很重要的影响。同时, 微通道的结构对气泡生成过程也有影响, 不同的结构形成气泡尺寸的相似定律不同。

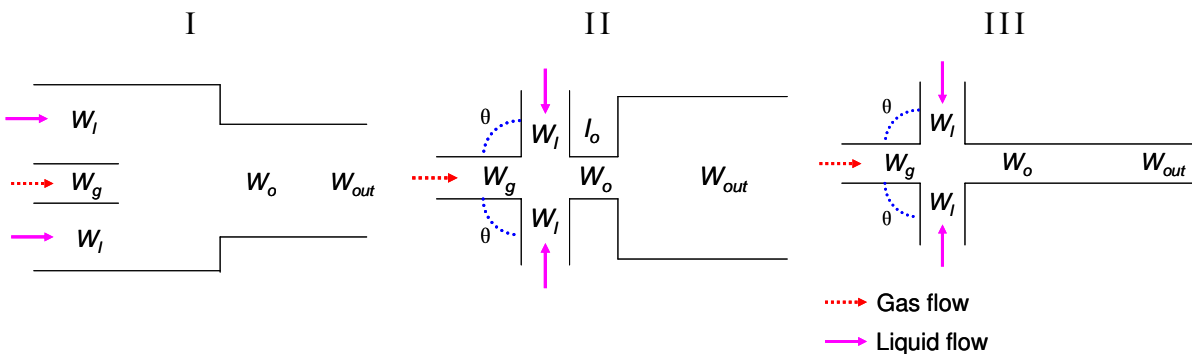


图 1-3 三种常见的聚焦型微通道

Fig. 1-3 Three typical microfluidic flow-focusing devices

对于第一种微通道结构内生成的气泡，Gañán-Calvo 等^[76]在液相雷诺数范围为 40~1000 内得到一个气泡直径与气液流速、流体物理性质、微通道的结构和尺寸的关联式，通过简化，最后得到一个简单的微通道尺寸预测模型：气泡直径与出口宽度的比例与气液流量比呈指数关系： $d/W_{out} \approx (Q_g/Q_l)^{0.37 \pm 0.005}$ 。Gordillo 等^[77]研究表明气含率由气液两相经过微通道的压力降的参数控制。

对于第二种微通道内生成的气泡，Garstecki 等^[57]发现在低毛细管数情况下 ($Ca \in (10^{-3}, 10^{-1})$)，气泡头的颈部夹断速率几乎是稳定的，与液相流量成正比。夹断速率与液相的表面张力值无关，而且比经典的不受约束的毛细管夹断速率要小得多。他们把这种不受表面张力控制的夹断过程归因于提供恒速连续流体的注射泵，当发展的分散相头部阻塞管道的时候，能量耗散增加，为了维持恒定的速度，注射泵不得不增加压力，这样的结果就是在两相接触处产生了积压，这种积压驱动分散相头部继续发展并最终被夹断。整个过程中，分散相头颈部的夹断过程中不受毛细管不稳定原理的控制（即与表面张力无关），而由液相流量来控制。Garstecki 等^[58]还得到了生成气泡的体积与控制参数（气相压力 P ，液相的流量 Q_l 和粘度 μ ）的关系： $V \propto P/Q_l \mu$ 。但是表面张力在 37~72 mN·m⁻¹ 范围内，对气泡生成体积的影响不大。这样就排除了气泡生成过程是由毛细管数 Ca 控制的，说明该过程不是简单的剪切力与表面张力之间的竞争。对于气泡生成体积的关联式，他们是这样解释的：气泡生成的体积等于气体的体积流量与生成周期的乘积。在气液接触处，气泡的膨胀速度可以用泊萧叶方程来估算： $Q_g = p/R_r \propto p/\mu$ ， R_r 为流体的粘性阻力。而气泡头的颈部夹断速率由液体流量控制，得到生成周期 $T \propto 1/Q_l$ 。气体膨胀速率与生成周期的乘积就得到最后的气泡生成体积。

Dollet 等^[56]研究了微通道结构（深宽比）对气泡生成过程的影响，认为气泡夹断过程是由气液两相的惯性力控制，而不是毛细管作用。他们在三个不同尺寸的微通道内考察了气泡头颈部最小距离 W_m 的演变过程，将此过程分为两个区域： W_m 随时间线性减小，称为 2D 区域，发生在 W_m 比通道厚度大的时候，具体的机理 Garstecki 等已经报道^[57]；第二个区域，当 $W_m = h$ 的时候， W_m 快速减小并最终夹断脱离，称为 3D 区域，在这个区域，气泡头颈部最小距离 W_m 与离最终夹断脱离的时间 $(T-t)$ 的关系为 $W_m \propto (T-t)^{1/3}$ 。他们在气液界面波动理论的基础上提出 2D 以及 3D 过程的解析式，说明 2D 夹断过程

常常是稳定的，而 3D 过程是不稳定的。

Jensen 等^[84]数值模拟了气泡生成的动态过程并提出一个气泡尺寸 V 与气体压力 P ，液体流量 Q_l 、表面张力 σ 和粘度 μ ，出口管道宽度 W_{out} 之间的相似率。与 Garstecki 等^[57]的实验数据相比，Jensen 等^[84]发现气体头颈部的夹断速度与 σ/μ 成正比，而与气液流量无关，他们认为这种差异来源于模拟中用的微通道为对称的限制结构，实验中用的材料为各向异性的。

Weber 等^[79]用流体体积法（VOF）研究了气泡的生成过程，并发现了一个新的生成区域，在此区域，可以生成更均一更小的气泡。

Skurtys^[78]研究了在非牛顿胶质流体内气泡的生成，实验观测到几个不同的流型区域，这些区域与气液表观速度有关，而且根据实验数据关联了气泡体积与流量之间的关系： $d/D_o = (Q_g/Q_l)^{0.4}$ 。他们认为，在实验研究区域，韦伯数范围为 $We \in (2, 50)$ ，即惯性力控制气泡生成的过程，而不是表面张力。所以，气泡生成的关联式中没有流体性质项。

Sullivan 等^[85]实验研究了稳定的和不稳定的气泡生成频率，并提出了各自的物理模型。并发现，出口管道中生成的气泡对气液接触处的生成频率产生影响。气泡生成频率可以分为两个部分：气泡头生长并填满接触处的时间；气泡头颈部被夹断并最终脱离的时间。第一部分时间即生长时间由气相头部与周围液相之间的压力差控制，最后可以转化为由液体流量以及接口处下游的气泡的个数（密度）控制。第二部分时间与液体的流量成反比。对于气泡生成的稳定区域，气泡生成频率可以近似表示为： $f \propto Q_l(P - P_c)/P$ ， P 为气相压力， P_c 为流体经过管道产生的压力差。如果流体是由压力驱动的，“下游流体效应”就变得很重要。对于装置结构控制的聚焦流，这种“下游流体效应”可以稳定流体—气泡个数的增加导致管道内阻力的增加，反过来降低气泡生成速率，这种作用亦称为“负反馈”。

对于第三种微结构内生成的气泡，Cubaud 等^[80]在不同表面张力的流体内生成气泡，并用数值模拟研究了实验条件下的气泡生成，认为气泡生成的尺寸 L 与夹断时间 T 和气泡平均速度 u_b 成正比。夹断时间，即液相流体夹断气体头颈部所需要的时间，可以近似认为气泡头颈部初始直径为微通道的宽度 w_c ，则 $T = w_c/u_l = w_c^3/Q_l$ 。气泡平均夹断速度为 $u_c = (Q_l + Q_g)/w_c^2$ 。最后得到气泡的长度为 $L = T \cdot u_c = w_c^3/Q_l \cdot (Q_l + Q_g)/w_c^2 = w_c(Q_l + Q_g)/Q_l$ 。他们认为这个表达式只是对

方形截面的微通道适用：长的气泡由于表面张力和装置的限制作用，在下游管道方向呈圆柱体形，气泡与正方形截面的管道的壁面之间的楔形空间有流体流过。这种装置内气泡体积的估算可以近似地认为是气液两相流之间的压力竞争的结果。其他研究者也提出了类似的观点^[57, 65, 85]。

Yu 等^[83]用实验和数值模拟的方法（格子玻尔兹曼方法，LBM）研究了不同流体性质以及不同微通道结构内气泡的生成。研究发现，流型区域以及气泡的形状与毛细管数 Ca 有关：在小毛细管数 $Ca < 0.01$ 情况下，气泡的生成过程是由气液两相的压力差决定的，并通常生成弹状气泡；在较大毛细管数 $Ca > 0.03$ 情况下，气泡生成通常是由连续相流体剪切力对气液两相界面产生的不稳定性决定的，生成的气泡呈子弹形状。气液接触处的结构对生成弹状气泡的尺寸有一定影响。

Dietrich 等^[81]在不同混合角度以及不同尺寸的微通道内多种性质的连续流体内生成了气泡，并得到一个预测气泡尺寸的关联式：

$$\frac{L}{W_g} = 8.3 \left(\frac{\theta}{\theta_{\max}} \right)^{-1/8} \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right) \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{1/10} \left(\frac{Q_g}{Q_l} \right)^{1/4} \quad (1-34)$$

其中 θ 为引入液体两旁路管道之间的夹角，实验范围为 $\theta \in (60^\circ, 180^\circ)$ ； $\theta_{\max} = 180^\circ$ ； σ_{ref} ， μ_{ref} 指水的表面张力和粘度。并用微粒子成像测速仪（micro-PIV）测量了气泡形成过程中周围流体的流场变化情况，定量证明了其他研究者^[57, 80]提出的微通道内弹状气泡形成机理：气泡夹断脱离过程由气液两相的压力差决定。

2 液滴生成

聚焦流十字型微通道内生成液滴的结构与气泡类似，在此不再叙述，下面介绍已见报道的微通道内的液滴生成结果。这些微通道内生成液滴的区域也可以分为滴状区（dripping regime）和喷射区（jetting regime），以及两个区域之间的过渡区域。

第一种微通道内液滴的生成。

Umbanhowar 等^[86]实验研究了水包油的微乳化过程。实验中用内径为 $0.7 \sim 100 \mu\text{m}$ 的小圆管为分散相引入管，生成的液滴的直径范围为 $2 \sim 200 \mu\text{m}$ 。实验发现，生成液滴的尺寸与分散相引入管的直径、两相流量和粘度、两相之间的界面张力等有关。他们认为滴

状区发生在毛细管力远大于惯性力的情况下，并在实验中只研究在该区域内生成的液滴，利用液滴脱离时刻表面张力与粘性曳力平衡原则得到预测液滴尺寸的表达式^[86, 87]。结果表明生成液滴的尺寸由两相流量比和毛细管数决定。如果分散相流量足够小，生成液滴的尺寸只与毛细管数有关。

Cramer 等^[88]实验研究了油包水的微液滴生成过程，所用的分散相引入管道为内径为 100 μm 的毛细管，连续相截面尺寸为 20 mm \times 2.5 mm。实验发现，当连续相速度达到某一个临界值的时候，滴状区就向喷射区转变，这个临界值随着分散相流量和粘度的增加而减小，随着界面张力的减小而减小。分散相流量的增加导致轴向动量的增加，容易形成喷射状；分散相粘度的增加致使液液界面的稳定性增加，也使喷射状容易形成；表面张力是阻止液滴脱离的力。生成液滴的尺寸受操作条件的控制：液滴体积随着连续相流量的增加而减小；随着分散相流量的增加而增加；随着界面张力的减小而增加；但是生成液滴的体积随粘度比的影响不大。Guillot 等^[89]和 Utada 等^[90]也研究了两个区域之间的转变。Guillot 等^[89]理论分析了滴状区和喷射区的转变，并认为滴状区（绝对不稳定，absolute instability）向喷射区（传递性不稳定，convective instability）的转变值随着毛细管数 Ca 的增加而增加，随约束度（the degree of confinement） $x = w_d/w_c$ 的增加而减小，随粘度比 λ 的增加而增加。Utada 等^[90]通过实验研究发现，两个区域的转变可以用连续相的毛细管数 Ca 和分散相的韦伯数 We 构成的相图来表示。

Hong 等^[91]用数值模拟的方法考察了两相流量对生成液滴的影响，研究表明当 $Q_d/Q_c \geq 0.1$ 的时候，生成液滴的体积几乎与两相流量无关，而与毛细管数 Ca 几乎呈线性关系，这种现象可以用剪切速率与液滴直径的关系来解释；当 $Q_d/Q_c < 0.1$ 的时候，生成液滴的体积由两相流量控制，而且此种情况下，生成频率、流型也受影响。

Hua 等^[92]也用数值模拟的方法研究了液滴的生成，并认为液滴生成过程由粘性曳力和表面张力控制，液滴的体积可以预测：在滴状区， $d \propto Ca_c^{-1/2} Re_c^{-1/6}$ ；在喷射区， $d \propto Ca_c^{1/3} We_c^{-1/2} \lambda^{-1/2}$ 。连续相流量和粘度越大，产生的曳力也越大，液滴越溶液脱离，生成的液滴体积越小；表面张力越大（韦伯数 We 越小），延迟分散相头部的脱离，有更多的分散相积聚在头部，生成液滴的体积越大。

Xu 等^[93]认为，在滴状区，液滴夹断由粘性力和表面张力控制，

而惯性力、浮力以及动量可以忽略。在分散相头部被夹断脱离时刻，两力达到平衡。并根据修正后的表面张力值以及由两相表观速度表示的粘性力值得到了生成液滴尺寸的表达式：

$$\frac{d}{w_d} = \sqrt{k \frac{\sigma}{\mu_c (\bar{u}_c - \bar{u}_d)}} \quad (1-35)$$

其中 k 是一个常数，与引入分散相管道的润湿性、微通道的限制度（degree of confinement）、表面活性剂的分布情况以及 Marangoni 效应有关。 $\bar{u}_c = 4Q_c / \pi(w_o^2 - d^2)$ ， $\bar{u}_d = 4Q_d / \pi d^2$ ，是分散相头部周围的连续相的速度以及内部分散相的速度。从这个关系式可以得到，生成液滴的尺寸与毛细管数的关系为： $d/w_d \propto Ca^{-1/2}$ 。

第二种微通道内液滴的生成。

Anna 等^[94]首先用这种微通道生成了油包水的微乳液，并通过实验发现，生成两种液滴类型：一种是尺寸与中间小孔的宽度可比的液滴，在较低连续相流速情况下发生；另一种是细长的分散相头部延伸到小孔后面宽的收集出口区域，并被连续相流体最后夹断脱离，这个时候生成液滴的尺寸比小孔要小得多，这种情况在较高连续相流速下发生。实验还发现，通过控制分散相流体和连续相流体的流速比 $\phi = Q_d / Q_c$ ，可以生成不同尺寸的液滴。在流量比的基础上，Anna 等^[95]又定义了一个基于连续相流体粘度和微通道的“有效伸长率 G ”（the effective elongation rate）的毛细管数来研究这种微通道内生成液滴的机理。研究表明，随着毛细管数 Ca 的增加，液滴生成可以划分为三个不同的区域：在较低的毛细管数下，液滴的生成由微通道的小孔的宽度控制，称为结构控制区（geometry-controlled）；随着毛细管数的增加，分散相头部的宽度由于连续相流体的粘性力的增加而变窄，这个时候生成的液滴的直径将小于小孔的宽度，称为滴状区（dripping）；在较高毛细管数的时候，分散相头部被拉得很长，延伸到小孔下游的出口收集区域，称为喷射区（jetting），这个区域生成的液滴尺寸也较大，而且尺寸不均一，不好控制。这些不同区域的转变受流量比 ϕ 的影响不大，但是，当在水里面加入表面活性剂后，流量比控制细线形的分散相头部的形成，这个时候出现液滴生成的另一种模式：细线生成模式（thread formation）。在这个区域，分散相头部的细线受流量和表面活性剂浓度的控制。该区域出现的范围为： $0.4 \leq Ca \leq 1.0$ 。当连续

相流量的增加比分散相流量的增加要快的时候，细线的长度也随着增加：细线长度最初的增长速度随着毛细管数的增加而增加，然后，增长速度变小。在 $Ca \approx 0.5$ 的时候，细线长度会达到一个最大值。虽然实验研究了不同液滴的生成区域，但是对于液滴的生成体积，实验中并没有进行总结，或者说，对于不同区域产生的液滴体积的大小，并不能够利用实验操作参数进行预测。

Zhou 等^[96]认为滴状液滴的生成是由毛细不稳定性（capillary instability）与拉伸分散相颈部的黏性曳力两种机理共同作用的结果。其中毛细不稳定性包括经典的雷诺毛细不稳定性（classic Rayleigh capillary instability）以及端部夹断机理（end-pinching mechanism）。因为研究发现生成液滴的尺寸不能用以上两种原理分析得出的相似率单独表示。前者为： $d/w_o \propto \phi^{1/2}$ ；后者为： $d/w_o \propto \sigma \phi^{1/2} w_{out}^2 / \mu_c Q_c \propto \sigma \phi^{3/2} w_{out}^2 / \mu_c Q_d$ 。但是，结果表明生成液滴的尺寸与小孔的宽度有关。对于喷射区，经分析发现液滴的夹断机理与滴状区类似，只是在该区域，分散相头部形态变成了喷流状。

Zhou 等^[96]研究发现，随着毛细管数的增加，滴状区向喷射区发展。Zhou 等^[96]认为两个区域的转变与两个时间尺度有关：界面扰动发展的毛细时间（capillary time）和流体传递的流动时间（flow time）。前者小于后者，液滴产生于滴状区；反之，扰动在扩大以前就传递到下流区域，形成射流。经过分析得出临界韦伯数可以表示为：当分散相流量一定的时候， $We_c \propto \phi^{-1/2}$ ；当连续相流量一定的时候， $We_c \propto \phi^{3/2}$ 。但是，这个相似率并没有用实验来验证。

Zhou 等^[96]还研究了非牛顿流体在牛顿流体中形成液滴的情况，研究表明流体的粘弹性使喷流所受的拉伸力变大，使得喷流延伸得更远，阻止产生卫星液滴（satellite drops），结果使得生成的液滴体积变大或者变小。

Utada 等^[11]用两个时间尺度来衡量滴状区与喷射区之间的转变：Rayleigh-Plateau 不稳定性的毛细夹断时间和喷流的生长时间。如果前者小于后者，由于两相界面的不稳定性，只要喷流头部足够大，就会夹断形成液滴，为滴状区；反之，喷流头部的生长比滴状区的液滴形成要快，为喷射区。并提出一个临界毛细管数 $Ca = t_{pinch} / t_{growth} = \mu_c Q_d / \sigma r_{jet}^2 \sim 1$ 。该观点与 Zhou 等^[96]提出观点的出发点不一样。Utada 等^[11]认为喷射区生成的液滴的体积可以用质量守恒定律得到：生成液滴的体积等于分散相的体积流量 Q_d 与夹断特征时

间 $t_{pinch} \propto r_{jet} \mu_c / \sigma$ 的乘积，最后推导得出的液滴直径为：
 $d = 2 \left(15 Q_d r_{jet} \mu_c / \pi \sigma \right)^{1/3}$ 。

Yobas 等^[97]产生油包水液滴的微通道所用的收集出口区的平面结构为逐渐扩大的三角形，聚焦出口方向的平面形状是逐渐缩小的三角形。Yobas 等^[97]认为这种结构的微通道容易在滴状区生成液滴，并提出了一个简单的物理模型来预测生成液滴的体积。

Nie 等^[98]考察了分散相的粘度对第二种微通道内微乳化的影响，研究表明粘度对形成乳化液的影响很大：分散相的粘度越大，形成的液滴的体积也越大，而多分散度降低。研究表明低粘度的分散相流体的夹断脱离过程与 Garstecki 等^[57]提出的流体控制夹断机理十分吻合。

第三种微通道内液滴的生成。

Funfschilling 等^[99]用微粒子成像测速仪（micro-PIV）研究了第三种微通道内滴状液滴生成过程中分散相头周围连续相流体的流场分布情况以及实时跟踪记录了分散相头的动态过程。研究表明，在低流速和中等毛细管数的实验条件下，液滴并不是由剪切原理生成的，而是由于分散相头部阻塞下流管道，由微流体泵驱动连续相流体在两相接触处被堵塞，这样在分散相颈部就产生了积压，这种积压使分散相头最终被夹断脱离。

Cubaud 等^[100]在第三种微通道内实验研究了在粘度较小的流体中形成粘度较大的微乳液的过程，发现不同的液滴形成区域与两相的毛细管数有关，并对滴状区和喷射区内生成液滴的尺寸进行了经验关联。

1.2.2 气泡（液滴）在复杂结构微通道内的流动

在比较复杂一些的微通道内，气泡（液滴）的流动行为也往往被改变。在微通道内，毛细管数小，剪切力会使两相界面变形使流体流动行为复杂化，这个时候流体的行为由毛细管数、微通道的限制度（degree of confinement）以及流体的物理性质控制^[101]。

Link 等^[102]报道了一种被动液滴破裂方法将液滴分裂成不同尺寸的小液滴，而且生成的小液滴尺寸可以在适当的操作条件下得到。T型分岔（下游为两个旁路，上游为主通道）的微通道，Link 等^[102]实验研究发现液滴在旁路对称的 T 型分岔分裂时候的临界毛细

管数可以表示为 $Ca_c = \alpha \varepsilon_e (\varepsilon_e^{-2/3} - 1)^2$, 其中 α 是一个与两相粘度和微通道的结构有关的常数, ε_e 是液滴的延展度, 是其长度与截面周长的比值: $\varepsilon_e = l/\pi w$ 。这个关系式是根据长的圆柱形液滴的毛细不稳定性 (Rayleigh-Plateau) 得出的, 这种情况下类似大的毛细管数 Ca 时非绕流流体经过液滴。相对于对称时的情况, 非对称时候, 延展度大些时, 液滴也稳定, 因为小的液滴在截面周长变得足够小的时候才断裂。

Engl 等^[103]报道了液滴群在旁路长度不同的 T 型分岔处的分布情况。液滴群可以交替地分布在两旁路, 或者全部流经较短些的旁路。液滴的分布与含有液滴的管道内的阻力有关, 而管道内流体的阻力与液滴的长度以及液滴之间的距离有关。Engl 等^[103]提出一个基于流动阻力的“平均速度场”模型预测液滴群在分岔处的频率。

Engl 等^[104]发现 T 型分岔处两不互溶流体呈现两个不同流型: 只选择一个旁路或者在分岔处分裂。不同的流型与微通道的限制度有关, 而与 T 型旁路的形状和角度、毛细效应等无关。

Cristobal 等^[105]设计并构建了一个很简单的分岔微通道来控制液滴行为, 这种装置含有两个出口, 而且两个出口又在下游连在一起, 液滴在这种装置内能交替地选择出口流出。

Fuerstman 等^[106]发表了一种用于信号译码/破译的微通道, 流动的液滴作为信号, 流过含有分岔长度不同的分岔口, 并在出口处又连在一起, 而后再接一个长度比例正好相反的类似的分岔, 最后流出液滴的频率与最开始的液滴的频率一样。

Prakash 等^[107]报道了一种用于和/或/非逻辑门的微通道, 气泡在这种微通道内的流动能通过装置的结构得到很好的控制, 这种气泡逻辑控制机理能推广到化学以及计算学中。

Baroud 等^[108]实验研究了低粘度的流体流经一个支路被流体充满的 Y 型分岔口时的情况, 并得到了低粘度流体在分岔口对称分裂的条件。研究发现敞开的支路入口情况下, 低粘性流体在分岔处呈不对称分岔; 在出口连接弹性室的情况下, 当流体速度足够大时, 低粘性流体在分岔处呈对称分布。并根据流体阻力原理和质量守恒原理建立了一个数学模型来解释实验现象。

Ody 等^[109]研究了一种润湿的液弹状流流经 T 型分岔处的情况, 在一个初始压力下, 液弹堵塞在分岔口, 而在这个压力之上时,

液弹在分岔口分裂或者被分裂成两个子液弹，两种不同的情况与驱动的压力和母液弹的长度有关。并建立了不同流区转变方程。

Frenz 等^[28]设计了一种微通道用来生成成对的油包水液滴 (water-in-oil droplet pairs)，这种微通道含有两个 T 型微液滴生成结构，生成的液滴在一个 Y 型的合流处汇合成对并流出，实验研究了生成成对液滴的频率和体积与两相流量的关系，并建立了一个简单的指数型物理模型来计算生成的成对液滴的频率和体积。这种微通道的结构实现了多个液滴的重新组合，是液滴行为管理 (droplet management) 的一种方式，具有很大的潜在研究和应用价值。

Utada 等^[29]实现了微通道内的双重乳化 (double emulsion)，并能通过控制操作条件实现生成多重液滴的体积以及各相体积比，这种微流体技术能够用于微乳化液的再包装。这种技术也是液滴管理的一种。

Lao 等^[110]设计了一种双重乳化的微通道，生成的液滴流经多个 T 型分岔口，并被分裂成很多小液滴，然后经过聚焦流十字型结构实现第二重乳化，这种结构实现了多重乳化液滴最内部的液滴个数可以高达 10 个。

Leshansky 等^[111]建立了一个 2D 模型来描述对称的 T 型分岔口液滴分裂情形，该模型机理以 Link^[102]提出的二维微通道内圆柱形液滴的毛细不稳定性为基础，并认为这种不稳定性由液滴和壁面之间的空隙内的压力损耗驱动。Leshansky 等^[111]推导出临界液滴伸展度与毛细管数的关系为： $l/w_c \cong 1.3Ca^{-0.21}$ ，该式子以液滴与壁面之间的窄空隙内的几何界面的润滑分析 (lubrication analysis) 为基础，并认为界面的行为由表面张力与粘性曳力共同作用。而且还得出液滴与壁面之间的空隙表达式为： $d/w_c \sim Ca^{2/5}$ ，适用于 $d \ll w_c$ 。

Jullien 等^[101]实验研究了 T 型分岔口的液滴分裂现象，毛细管数范围为 $4 \times 10^{-4} \leq Ca \leq 2 \times 10^{-1}$ ，研究发现液滴分裂的情况分为两种：一直伴随液滴与壁面间隙的分裂 (breakup regime with gaps)；液滴始终阻塞流体的分裂 (breakup)。前种情况与 Link^[102] 和 Leshansky 等^[111]研究的分岔口的分裂情况类似，只是毛细管数的范围不一样；实验结果也验证了 Leshansky 等^[111]提出的液滴伸展度以及液滴与壁面空隙的表达式。对于后一种分裂，研究了液滴的动态分裂过程

并提出一个与毛细管数无关的临界伸展度，这个观点的提出也是基于以前的研究^[112]。

1.2.3 微流体的 micro-PIV 测量

近年来，微粒子成像测速仪（micro-PIV）技术在微流体中的应用越来越受到重视。

Santiago 等^[113]首先开发了应用于微通道中流体的实时、全场速度测量技术—微粒子成像测速仪（micro-PIV）技术。Lindken 等^[114]利用微粒子成像测速仪（micro-PIV）技术测量了微通道内单相流的速度场分布。Günther 等^[115]首先利用微粒子成像测速仪（micro-PIV）技术测量了直管及蛇形通道的微通道内气液两相流中液相段内的逆行循环运动现象。随后，这一现象也被其他研究者报道^[116, 117]。

但是微粒子成像测速仪（micro-PIV）技术应用于微通道液滴及气泡生成和运动的研究很少。

Go 等^[118]报道了 Y 型微通道气泡生成过程中周围液相流体中流场的分布情况。Xiong 等^[119]利用微粒子成像测速仪（micro-PIV）技术研究了气液并流生成气泡的过程中，液相流体内流体的分布情况，研究发现气泡的形成与垂直于气相头颈部的液体流速的突然变化有关。van Steijn 等^[70]利用微粒子成像测速仪（micro-PIV）技术研究了 T 型微通道内气泡形成过程中周围液相流体的流场的三维分布情况，把气泡的形成过程分为三个部分：生长阶段；膨胀阶段和颈部形成；颈部的收缩以及快速夹断。Li H.Z. 课题组^[81, 82, 99, 120]用微粒子成像测速仪（micro-PIV）技术研究了聚焦流十字型微通道内气泡和液滴生成过程中连续相流体中流场的变化情况，并为气泡和液滴的形成机理提供了定量证据。

1.3 本章小结

微反应器、微接触器、微换热器等微设备均由微通道组成，而且这些设备在化工、能源、石油、生物等方面表现出高效、过程安全、容易控制等优势。深入开展微通道内气液两相流的流体行为的研究将促进微化工技术的进步和发展。

(1) 微通道内气液两相流的流型与常规尺度下的流型有区别，从目前的研究来看，不同的研究者观测到的流型不太一致。应开展不同尺寸、不同形状的微通道内气液两相流的流型、流型图的研究，对不同的实验现象要进行深入的机理研究。

(2) 对微通道内生成气泡或者液滴的已有报道进行了综述，从目前的研究现状可以看出来，目前的研究已经从实验阶段进入实验归类总结、机理研究阶段，但是，实验数据还是缺乏、特别是气泡或者液滴的生成模型或者理论还有待完善。

1.4 本文结构安排

第二章主要介绍微通道的构造和制作、实验流程和操作程序、流体的物理性质数据和测量手段等；第三章研究了竖直矩形微通道内气液两相流的流型特征；第四章研究了微通道内气泡的生成；含有突扩结构的微通道内气泡的行为研究；气泡在含有环路结构的微通道内的流动特性；第五章对研究工作进行了总结和展望。

第二章 实验装置及流程

微通道的宽度和深度均为微米级，其制作材料通常为硅片、玻璃、石英和有机聚合物等。微通道的加工技术在传统的光刻和蚀刻的基础上发展了模塑法、热压法、激光烧蚀法、软光刻等新方法^[121]。微通道内流体的流动是微流体系统研究的基本问题。对这些问题的研究离不开高空间分辨率和高精度的实验技术。带有显微系统的高速摄像机是流体可视化研究的重要工具。近年来，为了实现对微流体的实时定量测量，在粒子成像测速仪（PIV）技术基础上发展了微粒子成像测速仪技术（micro-PIV）。

这一章主要介绍微通道的制作及结构、实验装置及流程。首先介绍本文所用微通道的制作过程和方法；然后介绍本文所用的主要实验仪器——高速摄像机和微粒子成像测速仪的原理及应用过程；最后介绍了本文所用试剂的物理特性。

2.1 微通道的制作及结构

2.1.1 玻璃微通道的制作

实验使用的 T 型玻璃矩形截面微通道由浙江大学微分析实验室制作^[121, 122]。微通道由上下两片玻璃（1.6 mm 厚；30 × 60 mm）键合而成，在下层玻璃上 T 型微通道采用光刻和刻蚀技术制作，进出口均用金刚钻钻孔；上层玻璃为盖片。玻璃加工微通道的主要步骤为：

（1）在干净的玻璃基片表面镀上一层镍，用甩胶机在镍层上均匀涂抹一层光胶；

（2）将光刻掩模覆盖在基片上，用紫外光照射涂有光胶的基片，光胶层发生光化学反应；用显影的方法去除经曝光的光胶；

（3）采用化学的腐蚀方法在镍层上腐蚀出掩模上的平面二维图形；

（4）使用适合的刻蚀剂在基片上刻蚀所需要的通道；

(5) 刻蚀结束后，除去光胶层和牺牲层；

(6) 打孔后和玻璃盖片键合。

用 Adobe Illustrator 8.0 软件设计玻璃片上微通道，用高分辨率激光照排机 (SIGMA SETYER, 5080dpi, Heidelberg) 在照相底片上制得光刻掩模，用光刻机 (JKG2A 型, 上海光学机械厂) 将图形转移到玻璃基片的光胶层上后，用 Cr 刻蚀液 (硝酸铈铵+高氯酸) 除去玻璃基片图形上的 Cr 层，在 50% 玻璃刻蚀液 (1mol/LHF+1mol/LNaF) 中湿法刻蚀微通道。用金刚石钻头在相应的位置打孔，孔径为 2mm, 依次用水、丙酮、超纯水、硫酸、超纯水将玻璃盖片和加工好的基片用超声波清洗器 (SCQ-250, 上海申波超声公司) 彻底洗净后，在超纯水环境中将盖板和基片直接贴合，在真空干燥箱 (DFZ-6020 型; 上海精密实验设备有限公司) 中升温到 100%，保持 2 小时。冷却后转移到箱式电阻炉 (SX2-4-10, 由 XMC5400 程序稳定控制仪器控制温度, 沈阳电炉厂) 中加热键合。键合时高温炉升温速率为 10°C/min, 在 100°C 恒温 1 小时后，以 10°C/min 的温升速率升温至 580°C, 恒温 3 小时，再以同样的速度降温至室温，制得玻璃微通道。采用硬质塑料管作为接管，使用环氧树脂 (浙江黄岩产, 3A 超能胶) 将接管粘结在玻璃微通道进出口。使用树脂胶时，要将调制好的树脂胶放置 40 分钟左右，让树脂胶稍微固化变稠再使用，以防在粘结接头时由于胶水流动力性太强而流入到盖片上流体入孔处引起堵塞。这样一个完整的微通道就制作完毕了。图 2-1 为本文所采用的微通道的实物照片。T 型微通道的臂长均为 10mm, 主通道长 40mm。在本文中，T240、T160 及 T120 分别指微通道截面为 (深×宽): 40 × 240 μm (T240)、40 × 160 μm (T160)、40 × 120 μm (T120) 的微通道。

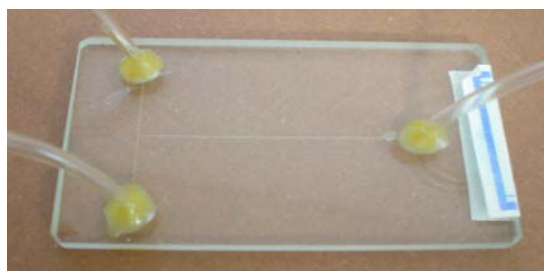


图 2-1 T 型玻璃微通道实物图

Fig. 2-1 Photos of the microfluidic T-junction, $40 \times 160 \mu\text{m}$ (T160)

2.1.2 硬质高分子聚合物微通道的制作

高分子聚物品种多，价廉，加工相对容易，又有很好的透明性，成为除玻璃材料以外的另一类主要芯片材料。其中，聚甲基丙烯酸甲酯（PMMA）就是一种常用的硬质聚合物^[121]。本文聚焦型及复杂结构的微通道即采用聚甲基丙烯酸甲酯（PMMA）制得。用精密机械加工方法在一片硬质聚甲基丙烯酸甲酯（PMMA）上加工出所需的微通道结构，然后用相同大小的另一片硬质聚甲基丙烯酸甲酯（PMMA）作为盖片，用螺丝将两片 PMMA 板压紧密封。用内径为 1 mm 的不锈钢管作为连接管分别连接微通道的进出口和聚乙烯软管（内径为 1.02 mm）。图 2-2 为用该材料制作的微通道示意图及相应的尺寸。这类微通道中的直通道的截面均为正方形。图中各代号说明如下：+400、+600 分别代表截面为 $400 \times 400 \mu\text{m}$ 、 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 的聚焦型微通道；E400 表示含有突扩结构的微通道，直微通道截面为 $400 \times 400 \mu\text{m}$ ，所有微通道厚度为 $400 \mu\text{m}$ ；D1 表示主通道中含有蛇形（弯路）以及对称环形的微通道。图 2-3 为聚焦型微通道+400、复杂微通道 D1 的实物图。

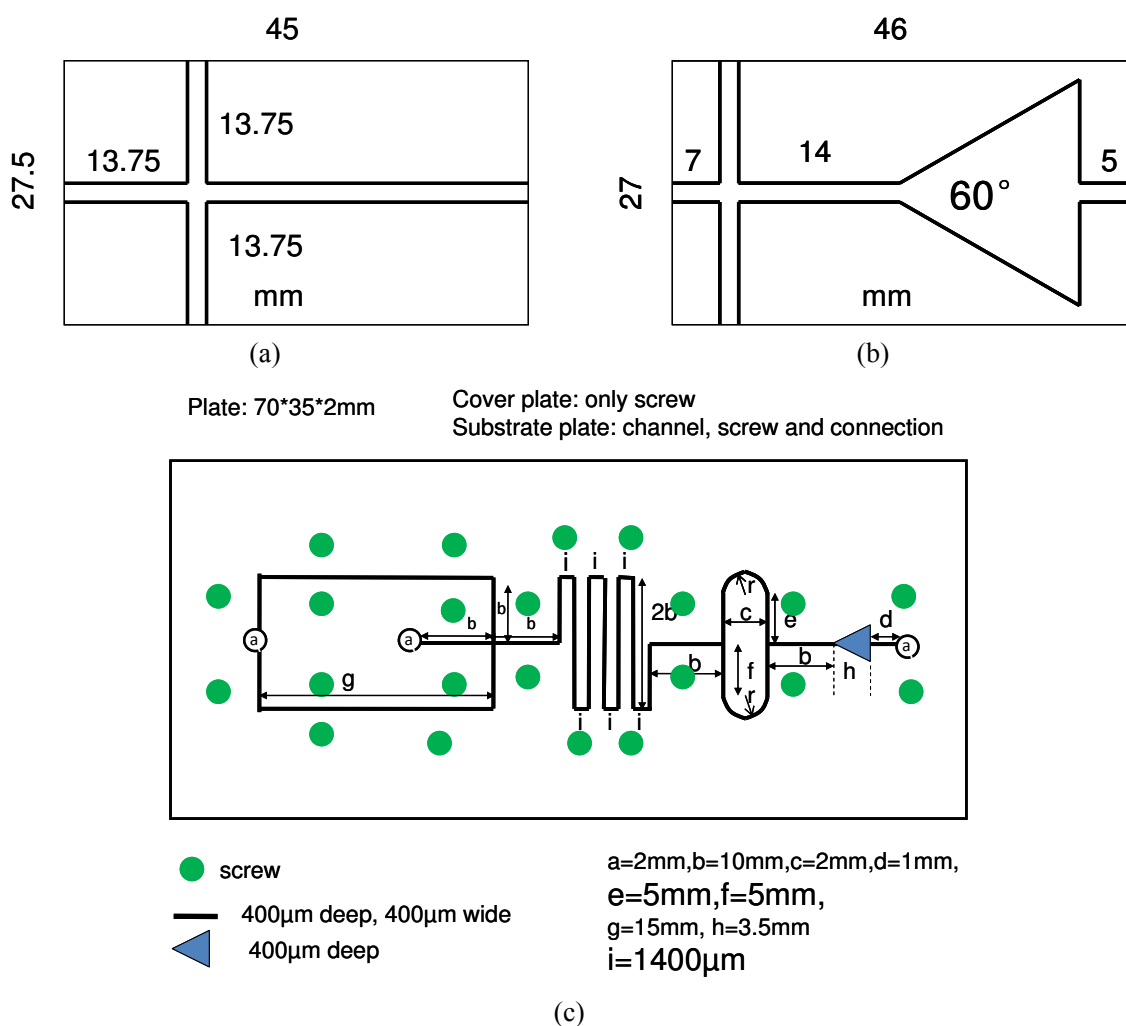


图 2-2 聚焦型及复杂微通道示意图

Fig. 2-2 Schematic diagram of the microfluidic devices: (a) +400 (400 μ m \times 400 μ m); (b) E400 (400 μ m \times 400 μ m); (c) D1 (400 μ m \times 400 μ m)

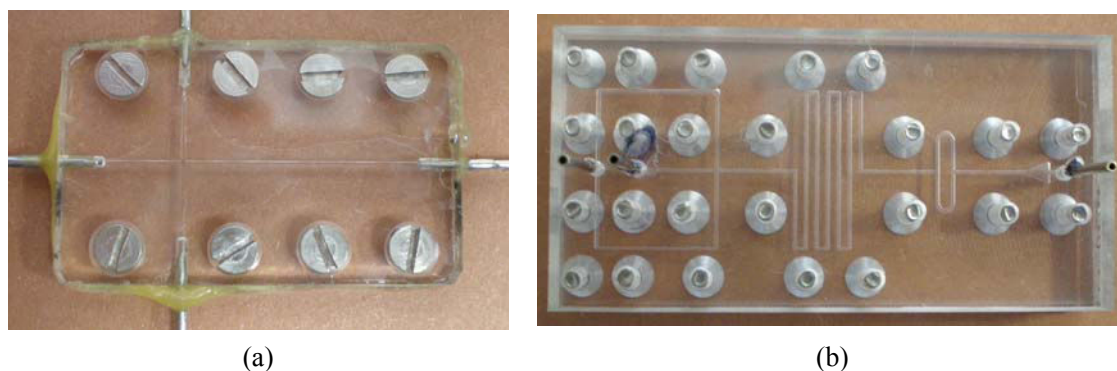


图 2-3 聚焦型及复杂微通道实物图

Fig. 2-3 Photos of the microfluidic devices: (a) +400 (400 μ m \times 400 μ m); (b) D1 (400 μ m \times 400 μ m)

2.2 实验装置及流程

2.2.1 实验流程

2.2.1.1 激光成像实验装置

本文以激光成像技术为基础，自主开发了一套研究微通道内气液两相流流型的实验装置，如图 2-4 所示。

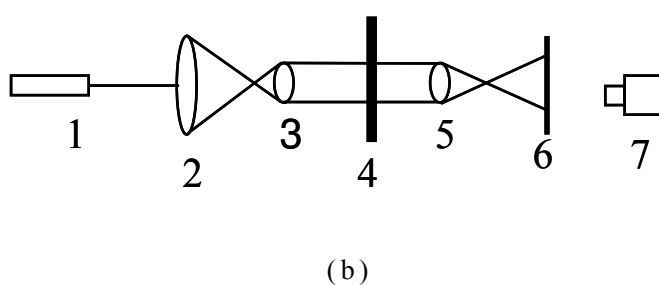
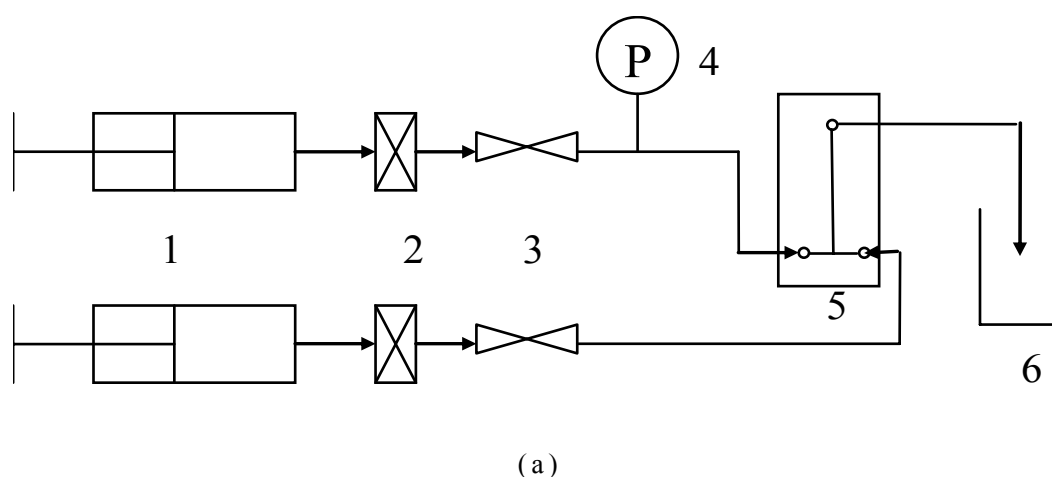


图 2-4 激光成像实验装置

Fig. 2-4 (a) Schematic diagram of the flow process. 1 microsyringe pump; 2 microporous filtering film; 3 valve; 4 pressure transducer; 5 microchannel; 6 beaker; (b) Optical diagram of experimental setup. 1 He-Ne laser; 2 spatial filter; 3 lens; 4 microchannel; 5 amplifying lens; 6 frosted glass; 7 CCD camera

两个装有高密封注射器的微型注射泵（WZ-50C6，浙江大学医学仪器有限公司，中国）用于控制气液两相流的流量。气液两相流分别经过多微孔过滤膜（ $\text{Ø} = 0.45 \mu\text{m}$ ）过滤，并在微通道的 T 型汇合点汇合。气体进口压力用一个压力传感器（S100，USA）进行实时记录。该实验中，空气用作气相，去离子水、乙醇和丙醇用作液相。注射器及微通道之间的管道为医用软管（内径：1.02 mm）。实验在每个恒定的液体流量下进行，并逐渐增加气体的流量。所有的实验均在常压及温度为 25°C 条件下进行（图 2-4a）。

激光成像测量系统用于气液两相流流型的研究（图 2-4b）。He-Ne 激光器（功率为 30mW）发出的激光分别经扩束镜、准直镜变为均匀的平行光，物光通过微通道，微通道内气液两相流再经放大镜（ $f = 4.5 \text{ cm}$ ）适当放大在毛玻璃接收屏成像，同时利用 CCD 摄像机（ 768×576 像素，25 fps）捕捉放大的图像，然后在计算机上实时显示并通过图像采集卡采集到硬盘。在每种气液条件下，至少采集 100 张图片。然后，对采集到的图片进行流型分析。此外，要得到清晰的图，必须满足以下几点条件：实验槽的前后两透光面必须严格平行且其材质透光性良好，同时要垂直于平行激光束，以及光路均严格平行于水平操作台等。

该套装置实验步骤：

1) 打开激光器电源，将电流调到 15 mA 左右，待稳定 30 分钟后，调节扩束镜、准直镜位置，使产生光强均匀的平行激光光束，并保证在毛玻璃接收屏上得到所需放大倍数的均匀光斑，同时使得微通道观察部位位于光斑中心上方适当高度。

2) 将注射器内分别装满气体和液体，并按图示连接好注射器以及微通道。

3) 检查装置气密性。先用微泵缓慢驱动气体，待压力表示数接近“0”的时候，再打开液体驱动泵。等待气液两相稳定，即流型稳定后开始实验。

4) 开启 CCD 照相机电源，打开图像采集软件实时显示，调节 CCD 照相机焦距以获得清晰图像，此时显示器屏幕上出现实际气液两相动态图像。

5) 调节注射泵驱动速率至实验预定值，开始图像序列采集到电脑硬盘中。

6) 每次改变流量后，待形成的流型稳定后，进行图像采集。

7) 每次改变实验条件, 如微通道尺寸、不同的流体时, 均需要完成密封连接后重复 1) 步骤。

8) 实验完成后, 排空微通道内流体, 并用无水乙醇擦洗 3~5 次, 然后用气体将微通道内剩余液体排尽待下次使用; 关闭注射泵、压力传感器以及激光器电源。

2.2.1.2 气泡的生成及流动实验装置

气泡及液滴的生成和流动特性的实验装置主要分为流体控制系统和图像捕获采集系统。图 2-5 显示了气泡生成及流动的实验装置。图中微通道为 +600 聚焦型气泡发生装置, 如果进行其他装置的实验, 将其换为目标装置。

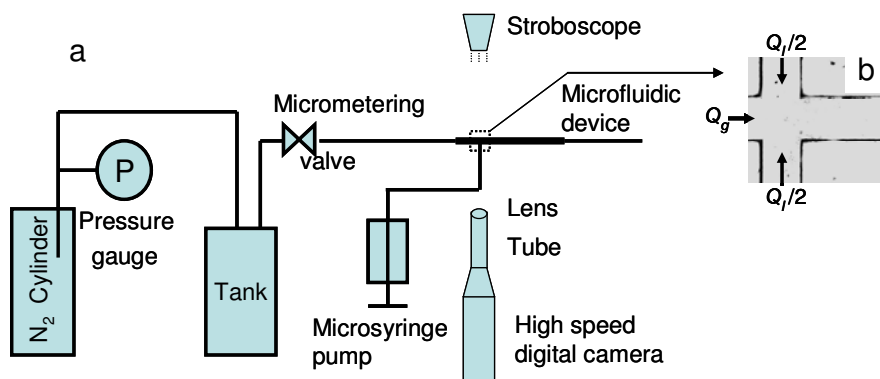


图 2-5 气泡生成及流动实验装置示意图

Fig. 2-5 Schematic representation of system for bubble formation and behaviors

液体驱动及流量由装有注射器的微注射泵 (Harvard Apparatus, PHD 22/2000, USA) 控制。该注射泵的调节范围为 $0.0001 \mu\text{l/h}$ ($0.5 \mu\text{l}$ 的注射器) ~ 220.82 ml/min (140 ml 的注射器)。注射器和微通道之间用聚乙烯胶管 (内径为 1.02 mm) 连接。

气体由储气钢瓶提供, 并经过一个缓冲灌。缓冲灌内压力用压力表测量。通过调节储气罐的开关, 可以控制流出气体的压力, 本文中缓冲灌内压力控制在 70 kPa 。然后经过一个高精度的数字针形阀 (Sagana Instrumentation, Luxembourg) 流入微通道。气体的流量是在恒定的压力下, 通过调节数字针形阀的示数大小来控制。在进行实验之前, 要对气体的流量进行标定: 在压力表显示为 70 kPa

时，逐渐调节数字针形阀的示数，在出口处用皂泡流量计计算其速度。这样将数字针形阀的示数与气体流量就对应起来了。在后续实验中，只需要调节数字针形阀至实验预定值即可。

所有的实验均是在室温和常压条件下进行。

本文用高速摄像机（CamRecord 600, Germany）研究了微通道内气泡、液滴的生成及流动过程（图 2-6）。该高速摄像机在 1280×1024 像素分辨率下可达 500 fps，降低分辨率，其拍摄速度可高达 100000 fps。曝光时间范围为： $1/1000000 \sim 1/50$ s。如果运动越快，就应该降低曝光时间。高速摄像机镜头与微通道之间装有带显微放大镜的伸缩管，为使图像放大到一定范围便于观察和分析。

照明是实验中很重要的一个问题。首先，它能在低快门速度下提供足够光线满足高拍摄速度；其次，它必须是连续光；再次，光源必须均一，便于对采集到的图片进行分析。鉴于此，本文选择一种冷光纤光源（Jeulim S.A., France），放置在微通道的另一侧（与高速摄像机方向相反）。

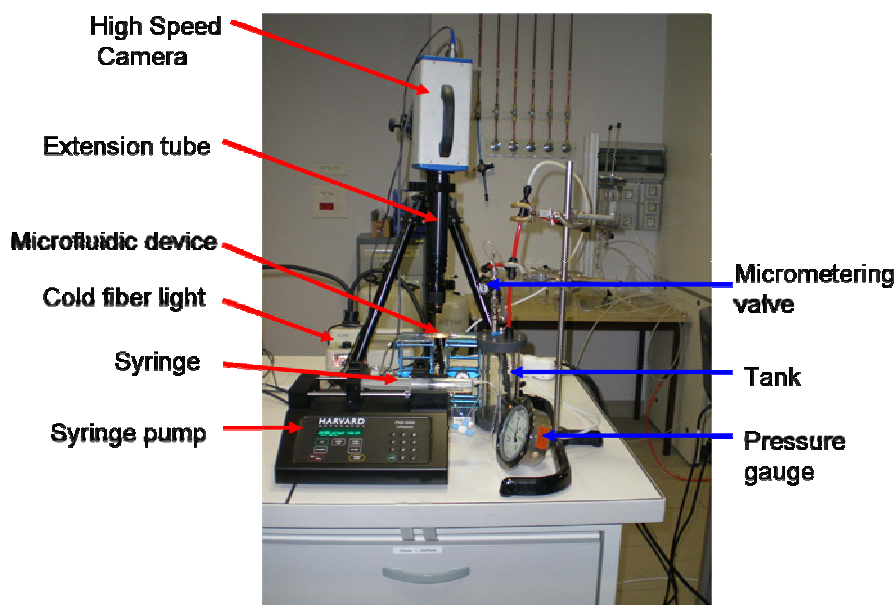


图 2-6 气泡生成及流动实验装置实物图

Fig. 2-6 Photos of system for bubble formation and behaviors

气泡发生及流动装置实验步骤：

1) 按图示连接气液驱动系统与微通道。将装满液体的注射泵装在微注射泵上。

2) 检查装置气密性。完毕后, 打开气体储气罐的开关, 将压力调至压力表示数为 70kPa。数分钟后, 调节针形阀至预定值。

3) 打开微注射泵, 设定好与注射器对应的直径值。设定流量值。开始驱动液体。

4) 打开冷光源, 使光度至合适值。开启高速摄像机。打开与高速摄像机相连的电脑内的控制及采集程序, 设定拍摄速度值、曝光时间及图片帧数。将程序调至实时采集画面。

5) 调节冷光源、微通道与高速摄像机之间的距离和位置, 使三者一条直线上, 并至观测画面最清晰、达到理想放大倍数。

6) 开始实验, 调节气液流量至预定值, 待数分钟流体稳定后开始采集图像序列, 并保存到电脑。

7) 每次改变流量后, 待流体稳定后, 再进行图像采集。

8) 每次改变实验条件, 如微通道尺寸、不同的流体时, 均需要完成密封连接后重复 1) 步骤。

9) 实验完成后, 排空微通道内流体, 并用去离子水洗 3~5 次, 然后用气体将微通道内剩余液体排尽待下次使用; 关闭注射泵、冷光源、高速摄像机以及对应的软件。

2.2.2 微粒子成像测速仪 (micro-PIV) 的原理

微粒成像测速技术 (Particle Image Velocimetry, PIV) 是 20 世纪 80 年代发展起来的一种流动测量与显示技术。它突破了传统流动单点测试技术的局限, 能够对流场不产生干扰的基础上, 实现流动瞬态、全场的测试^[123]。通常的方法是在液流中引入一定大小粒径的微粒作为示踪粒子, 连续记录流场中的运动图像, 并对前后两幅图像用相关理论进行处理, 确定一定时间间隔内示踪物粒子位置变动情况, 从而得到有关流体流动的信息, 可观测流体流速和流型, 测量流体流动参数, 其结果具有良好的精度和空间分辨率^[121]。

随着微流控系统的研究深入, 对微流体的速度测量及流场观测也提出了自身要求。20 世纪 90 年代末, 国际上在传统的 PIV 技术基础上发展了一种对微尺度流动进行全场测量的实验方法, 称为微流体粒子成像测速仪 (micro-Particle Image Velocimetry, micro-PIV or μ -PIV)^[113, 123, 124]。该技术使人们可以直接对流体元件内部流场进行测量, 为研究复杂微尺度流动现象和流动机理创造了条件。

目前其他一些可用于微尺度流场的测试技术，如 micro-LDV、X 射线微图像技术、分子标记测速技术 (MTV)，其分辨率和测量精度都无法和 micro-PIV 相比。实践证明以上几种微尺度测速技术最大分辨率仅能达到 $10\ \mu\text{m}$ 以上，而 micro-PIV 测速技术的空间分辨率已经达到了小于 $10\ \mu\text{m}$ 的水平。通过发展更为先进的图像采集和处理技术，micro-PIV 测量分辨率可达单个微米量级。

与传统 PIV 测速的原理一样，目前采用的 micro-PIV 也是在流场中播撒流动跟随性很好的示踪粒子，对粒子进行激光照明，由 CCD 相机记录连续两次曝光时间间隔粒子的位移情况，最后通过计算机图像分析技术给出瞬时速度场。但由于所研究问题的特殊性，micro-PIV 技术与传统 PIV 存在较大差别，主要表现在如下几个方面：(1) 获取图像的方式不同。由于流动尺度在数十微米到亚毫米量级，普通 CCD 相机没有办法获取如此小尺度下粒子的图像。因此，必须采用显微观测技术才能够得以实现；(2) 光照明方式不同。传统 PIV 测量流场的照明方式采用片光源技术仅对测量平面进行照明。为了获得较高的测量精度，光片厚度要求小于照相系统的景深。但是对 micro-PIV 而言，由于待测流场尺度微小，无论采用何种方式对流场进行照明，光照区域都可能超出流动通道截面的尺度。因此，对于 micro-PIV 测量流场是被通体照亮，称为体照明方式；(3) 播撒粒子的要求高。在微尺度条件下，粒子的选择更为严格。示踪粒子应不对流场产生干扰，也不能够对流道造成堵塞，所以粒径一般控制在数百纳米大小，这样容易受到布朗运动的影响，造成较大的随机误差，需要采用有效方法减小这种误差；另外，由于普通粒子的散射光强度无法满足成像要求，必须采用荧光粒子作为示踪粒子，选择的荧光物质激发光波长应和照明光波长匹配；(4) 图像处理算法与常规 PIV 算法有一定的区别。由于采用体照明方式，照相机景深之外的荧光粒子也有发射光进入 CCD 相机，图像中会有较大的背景噪音，采用传统的相关技术进行处理误差会很大，需要发展新的算法减小误差提高速度计算的准确性。目前，体照明方式，小粒子以及布朗运动是 micro-PIV 区别于传统大尺度 PIV 的 3 个基本问题^[123]。

2.2.2.1 micro-PIV 实验系统

micro-PIV 与传统 PIV 最基本的区别在于 micro-PIV 系统是通过显微照相技术达到对微尺度流动进行显示的分辨率。图 2-7 给出了本实验所用的 micro-PIV (Dantec Dynamics, Denmark) 的实物图及运行情况。图 2-8 是该系统组成结构及工作原理。整个系统由频闪仪、微通道、具有不同倍数($2.5\times$ 至 $100\times$)物镜(Leica, HC PLAN)的反转显微镜(Leica, DM ILM)、以及 CCD 相机几个主要部分组成。其工作原理为: 将待测微通道固定在显微镜观测平台上, 在单色频闪仪的体照明下, 连续两次曝光时示踪粒子的黑点投影(背景为白色)被连接在显微镜上的 CCD 相机记录并保存于电脑, 形成待处理图片, 然后经粒子图像法等方法处理图片。底片上记录的是整个区域的粒子图像。用计算机图像处理技术先将图像分成许多很小的判读域, 然后判定该区域中每个粒子的前后位置, 就可确定粒子的位移 ΔL 和方向。判读域中图像包含了大量的小粒子, 在这样的场中是很难甚至不可能依靠直接粒子跟踪去识别正确的图像, 这时就要使用自相关或者互相关的统计技术。而脉冲间隔时间 Δt 是已知的, 由此可得该粒子的速度矢量(图 2-9)。

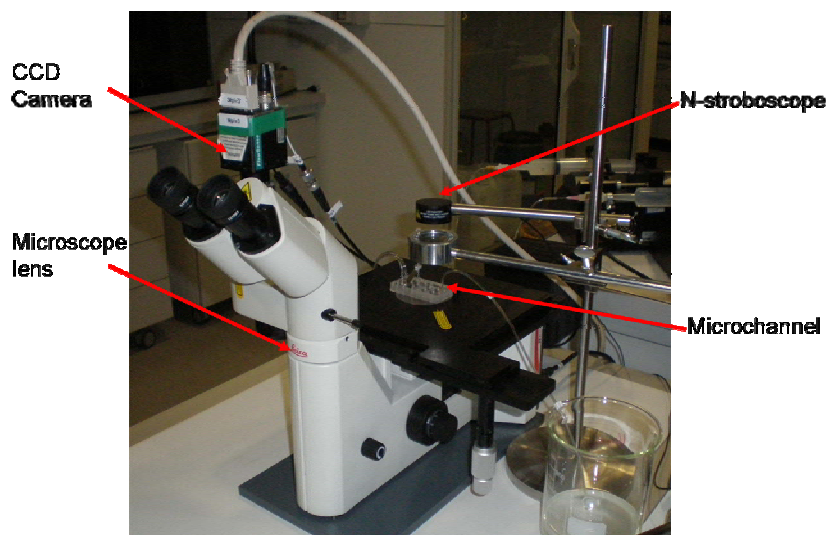


图 2-7 LSGC, Nancy-University (Nancy, France) 的 micro-PIV 系统

Fig. 2-7 Photos of micro-PIV system in LSGC, Nancy-University (Nancy, France)

对此判读域的粒子数据进行统计平均，就得到这个测点的速度矢量。进一步对所有小区域进行上述判定和统计，就得出整个二维速度场的初步结果。

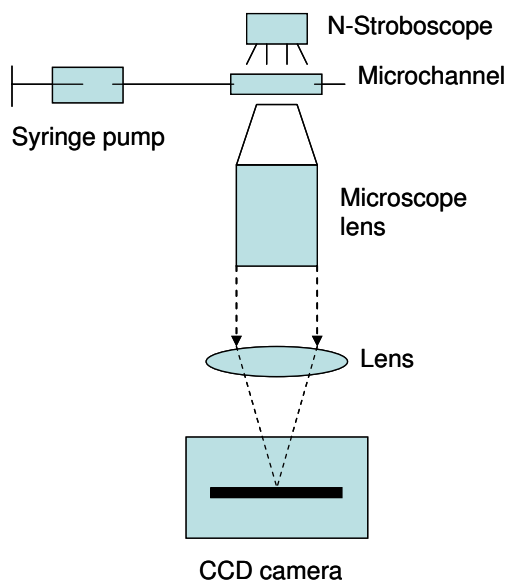


图 2-8 micro-PIV 系统示意图

Fig. 2-8 Schematic representation of micro-PIV system

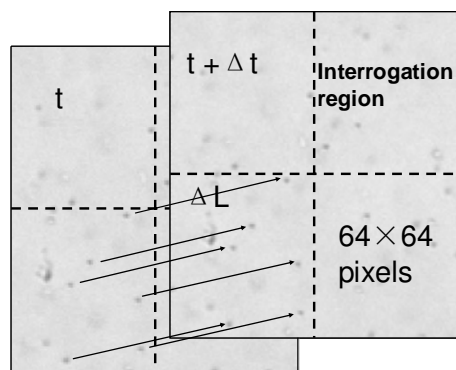


图 2-9 数据分析原理

Fig. 2-9 Principle of data analysing process

2.2.2.2 micro-PIV 示踪粒子

微尺度流动的测量对播撒粒子的要求比传统大尺度 PIV 严格。

示踪粒子不应对流场有大的干扰，也不能够堵塞流道，这就要求示踪粒子直径很小。目前，micro-PIV 实验中采用的粒径一般为数百纳米，有的粒径也可以达到几个微米，此时粒子的布朗运动变得非常突出。示踪粒子受到布朗运动的影响，其结果减弱了相关函数的信号强度，使得信号峰值与噪声峰值不容易被区分开来，因此需要消除或尽可能减小布朗运动对速度场测量结果的影响。假定分子扩散系数为 D ，保持常数不变，在很短时间间隔 Δt 内的速度假定为 u 。由布朗运动产生的误差为^[113, 123]

$$\varepsilon_B = \frac{\langle s^2 \rangle^{1/2}}{\Delta x} = \frac{\sqrt{2D/\Delta t}}{u} \quad (2-1)$$

其中 $\langle s^2 \rangle$ 为粒子扩散的均方距离， $\Delta x = u\Delta t$ 为粒子在 Δt 时间间隔内的位移。 D 的计算由 Einstein 首先推导出^[125]：

$$D = \frac{kT}{3\pi\mu d} \quad (2-2)$$

其中 k 为 Boltzmann 常数， T 为流体绝对温度， μ 为流体动力黏性系数， d 为示踪粒子直径。由于布朗运动是一种随机运动，由其产生的误差分布是无偏的。而且目前 micro-PIV 测量多限于流速较低，流动为定常的情况。因此在进行速度测量是可以对一个判读域中每个粒子的速度取平均后，再对若干次试验结果进行系综平均，就可以较大程度的减小布朗运动带来的误差。假定判读域中每个粒子对平均速度矢量的贡献相等而且统计上相互独立，则由于布朗运动带来的系综平均误差为：

$$\varepsilon = \frac{\varepsilon_B}{\sqrt{N}} \quad (2-3)$$

N 取值越大，由布朗运动带来的误差越小。

在我们的实验中，相机的频率为 4 s^{-1} ，颗粒的直径为 $200 \times 10^{-9} \text{ m}$ ，随机运动速度约为 $3 \times 10^{-6} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 。所用流体的速度为数百 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 。预期的速度误差量级为 1%。为了避免布朗运动带来的误差，我们应该选用大些的颗粒，但是，大颗粒的沉降速度越大。在斯托克斯区域 (Stokes regime)，直径为 d 的颗粒的沉降速度为：

$$u_p = \frac{d^2 g (\rho_p - \rho_l)}{18\mu} \quad (2-4)$$

如果示踪粒子的直径为 $3 \times 10^{-6} \text{m}$ ，其沉降速度约为 $1.5 \times 10^{-6} \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。考虑到布朗运动，以及误差范围为 1%，最优的示踪粒子直径范围为 $(0.5 \sim 3) \times 10^{-6} \text{m}$ 。而且，示踪粒子直径的选取还与微通道的尺寸、视窗范围和 CCD 相机物镜等有关^[81]。

本文中，示踪剂为一种亲水性的乳液微球 (Latex microspheres, Merck Estapor, France)。其密度为 $1056 \text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ，平均校准直径为 $0.88 \times 10^{-6} \text{m}$ 。这种粒子既能满足良好的流体跟踪性，又能很大程度上避免布朗运动带来的误差。一般来说，示踪粒子的浓度在每个判读域内的粒子数为 5 个左右为合适。

2.2.2.3 micro-PIV 的体照明方式

micro-PIV 采用体照明方式 (volume illumination) 的原因有^[123]：(1) 由于微尺度结构加工工艺的原因，光路被限制于一个方向；(2) 微通道要求测量平面仅有几个微米厚，而传统 PIV 的片光源很难做到这么薄，通常不容易将光片与测量平面完全重合，因此对于 micro-PIV 测量采用体照明方式是唯一可行的方式^[126]。图 2-10 给出了体照明方式示意图，入射光平面与透镜进光面重合。由于采用体照明方式，对粒子群运动进行记录需要通过显微物镜来控制其拍摄深度，由此实现深度方向较高的空间分辨率，这取决于物镜的景深和系统测量深度。

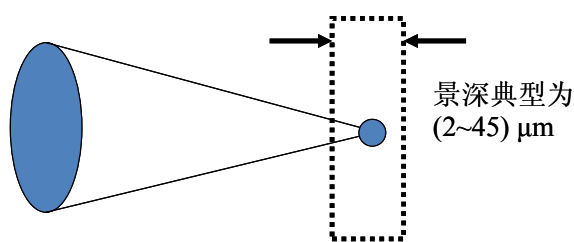


图 2-10 体照明方式

Fig. 2-10 Volumetric illumination system for micro-PIV system

对于体照明方式，在照明光锥内深度方向的所有粒子都被照射，每个粒子的发射光在图像中被记录下来。位于测量区之外的粒子的图像成为背景噪音，降低了图像的信噪比。信噪比受到许多因素影响：粒子的大小和浓度、测试段几何形状、照明成像系统以及

CCD 相机等。对于一个固定的照明深度，背景噪音水平可以通过减小粒子浓度来降低。但低粒子浓度要求使用更大的判读域获得准确的相关信号，因此降低了测量的空间分辨率。如果粒子浓度大，为保持一个适当的信噪比，则可以采用小判读域来提高测量空间分辨率。对于一个给定的粒子浓度，测试深度的尺度越小所获得图像的信噪比越高。这是因为测试深度减小也就意味着减小了焦平面之外的粒子数，而焦平面上的粒子数不变，因此降低了噪音的强度。总的来说，示踪粒子的浓度应当进行合适的选取，从而在取得满意图像质量的同时，获得所希望的空间分辨率^[123]。

2.2.2.4 图像处理技术

目前图像处理技术应用较多的是互相关技术。CCD 相机采用跨帧技术将第 1 次和第 2 次曝光的粒子图像分别记录在相继的两帧上，对粒子图像进行互相关处理，在相关函数图中存在一个明显的峰值。函数坐标中心和峰值分别代表第 1 次曝光和第 2 次曝光的粒子群空间位置，由此可以判别位移的方向。考虑系统的放大倍数和两次激光脉冲的时间间隔，就可以通过相关函数图中峰值与中心坐标差计算出粒子群在实际空间中位移的大小和平均速度，用粒子群的平均速度代表这点的流场速度。对传统大尺度 PIV 测量，采用标准的互相关分析使每一对图像能够独立获得满足精度要求的速度场。在定常流动的测量中，通常进行多次测量，将每次测量得到的速度场对测量次数取平均，可以降低单独一次测量图像中随机噪声对速度计算带来的误差，从而获得一个高质量的速度分布。然而，在微尺度条件下情况就不这么简单。仅用上述方法而不加特殊处理，误差仍会很大。目前，对于 micro-PIV 技术已经发展了诸如平均相关技术、图像重叠技术、背景噪音消除法等技术对图像进行处理^[123]。

平均相关技术与前文提到的计算完一系列速度场后进行系综平均有所不同，此法是在寻找相关峰值之前在每个测量点处对相关函数进行系综平均，用平均的相关函数计算速度场，故称为平均相关法。采用平均相关法，信号峰值往往被提高，而随机噪声则被大大降低。此法不受粒子图像密度的限制，并且可以获得更高的信噪比^[123]。

低密度图像重叠法（overlapping of LID-PIV recording）是通过计算创造一定数量的低粒子密度 PIV 图像的重叠，进行图像灰度处理后再采用传统相关法进行速度场的计算。此法适用于粒子图像密度比较低且图像总数不太多的情况，对高密度图像以及总数过多的低密度图像不适用^[123]。

随机噪音对相关函数的贡献可以通过平均相关法或图像重叠法进行清除，因为随机噪音的位置不断发生变化，通过对多个图像进行平均就可以很好的清除。但是对于诸如壁面反射光、玻璃上的污物、粘附于壁面的粒子等位置不发生变化的一类噪音，他们对图像灰度值的贡献不论是否进行平均都不发生变化，对这部分噪音的贡献采用平均技术或者图像重叠的方法进行清除都会失败。这个时候，可以采用数字滤波器（digital filter）方法：将背景噪音的灰度值设定为最小值，则可以用图像的灰度值减去最小灰度值达到清除这种背景噪音的目的^[123]。

本文用 FlowMap 软件（Dantec Dynamics, Denmark）对采集的原图片进行后处理。并先用屏蔽功能（masking function）消除目标流体以外的噪音，然后用互相关功能（cross-correlation function）对屏蔽后的图片进行处理，采用的判读域为 64×64 像素，50%的窗口重叠部分。这样就得到了初步的流场图。考虑到随机噪音、位置不发生变化的噪音等，需要对初步流场图进行速度限定（velocity range）、平均校正（moving averaged validation）、滤波（filter）等一系列的处理，然后得到最终的流场图。

操作步骤：

1) 首先开启所有硬件设备，包括频闪仪和 CCD 的电源，将物镜调至需要的倍数（+600 微通道， $10 \times$ ）。

2) 按实验流程图连接好实验装置。将混合有示踪粒子的液体装入注射器内。检查气密性后，连接气液驱动系统与微通道。并开始驱动气液流体。

3) 将连接好的微通道放置在载物台的观察窗口。利用目镜，通过调节载物台的上下左右位置，调节物镜与微通道的距离。确定微通道的上下壁面以及中间位置，记录对应的载物台高度，以便后续调节。一般来说，使物镜聚焦在微通道的中间平面。

4) 开启计算机以及 FlowMap 软件。并创建文件目录。设定好各个参数，并用软件适时观察流体。将频闪仪的激光闪频时间

(laser) 设为 $200\ \mu\text{s}$ 左右, 曝光时间间隔(dt)设为 $300\ \mu\text{s}$, 引发频率(trigger frequency)为 $5\ \text{Hz}$ 。

5) 待微流体系统稳定后, 使物镜聚焦在目标平面以及目标流体位置。

6) 运行软件记录实验过程, 保存连续的实验图片。

7) 在上述图像中选择所需区域通过软件进行分析, 从而获取相关流场信息图。

8) 实验结束后, 依次关闭软件、计算机、CCD 照相机、闪频仪和气液流体驱动系统。

2.2.3 流体性质

2.2.3.1 粘度测量

本文中所用牛顿流体及非牛顿流体的粘度均在流变仪(RFS II, Rheometric Scientific, USA)上进行测量。温度设定为室温。

实验步骤:

1) 开机时先开启空气压缩机, 检查气路是否通畅, 察看气动轴承供气是否正常($2.6\ \text{bar}$), 气动轴承的冷却系统是否正常, 然后察看 ETC 供气是否正常($2\sim 5\ \text{bar}$); 检查都正常后开启主机电源, 打开测试软件。

2) 开启水浴控温系统, 设定测试温度, 注意更换样品时, 及时关闭或打开水浴控温系统, 防止排气时喷出水。

3) 将圆锥体转子与主机相连, 并将细导线连接在转子与主机的两个连接口。

4) 将待测样品从中间开始慢慢地铺在载物台中间, 注意不要有气泡出现。

5) 利用软件程序使载物台上升, 几乎与圆锥体转子接触。

6) 校正平台。并调零后开始设定软件中的参数, 进行实验。

7) 选择剪切速率, 采样频率和所要测定物理量, 平衡一段时间。

8) 平衡结束后, 开始测量, 记录数据, 并绘出相应图。

2.2.3.2 表面张力测量

本文中流体的表面张力以及液液界面张力均用悬滴法测量，在表面张力仪(I.T. Concept, France)上完成。

实验步骤：

- 1) 打开实验仪器以及电脑。
- 2) 将待测样品倒入样品池中，使其垂直放好，并调节其位置，使观察窗口正好能看清楚气泡或者液滴，而且不能超出窗口范围。
- 3) 打开实验软件，进行竖直、体积等校正。设定跟踪窗口以及初始体积。
- 4) 开始实验，一般记录时间为 1 小时，保存数据并得到表面张力值。

2.2.3.3 气液两相流中牛顿流体的物性数据

在竖直微通道内的气液两相流流型研究中，为了考察不同液相下的流型，本文用了三种不同物性的液体，见表 2-1。

表 2-1 气液两相流流型研究中流体的物性数据

Table 2-1 Properties of the fluids in the experiments of gas-liquid two-phase flow

Fluid	Density ρ , $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$	Viscosity μ , $\text{mPa}\cdot\text{s}$	Surface tension σ , $\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$
Deionized water	997	0.8937	72.1
Ethanol	795	1.1600	21.4
n-propanol	802	1.8539	22.6
Air	1.18	0.0183	-

水平微通道内气泡的运动及流动特性研究中，液相主要是水的不同溶剂。通过在水里加入不同浓度（0-0.8 wt%）的表面活性剂十二烷基硫酸钠（sodium dodecyl sulfate, SDS）(Amresco, USA)和

同浓度(1 wt%, 2 wt%,)的吐温 80 (Tween 80)(Croda Internatinal PLC, UK)改变其表面张力。在水里加入不同浓度(25 wt %, 50 wt %, 62 wt %) 的甘油(Prolabo, France)改变其粘度。这些流体的物性数据及表 2-2。

表 2-2 气泡生成及流动特性研究中流体的物性数据

Table 2-2 Experimental data of various gas-liquid systems used in the experiments for bubble formation and behaviors

Liquid phase	Surface tension, σ	Viscosity, μ	Density, ρ
	($\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$)	($\text{mPa}\cdot\text{s}$)	($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$) $\times 10^3$
water	72.0	0.92	1
0.01% SDS	54.3	0.92	1
0.05% SDS	48.6	0.92	1
0.1% SDS	39.0	0.92	1
0.2% SDS	33.8	0.92	1
0.25% SDS	33.5	0.92	1
0.5% SDS	33.0	0.92	1
0.8% SDS	32.5	0.92	1
1% Tween80	37.4	0.92	1
2% Tween80	30.5	0.92	1
0.5% SDS/25% glycerol	31.5	2.32	1.06
0.5% SDS/50% glycerol	31.5	6.53	1.13
0.5% SDS/62% glycerol	31.5	10.18	1.16

2.2.3.4 气液两相流中非牛顿流体的物性数据

本文考察微通道内气泡在非牛顿流体里的生成情况。非牛顿流体为不同浓度(0.1-1.25 wt%)的黏弹性聚丙烯酰胺溶液 (polyacrylamide, PAAm) (AN 913 SH, France)。对于 PAAm 溶液, 实验测定的应力和粘度随剪切速率的变化如图 2-11 所示。

在实验条件下, 通过气液流体表观速度和微通道直径 ($\dot{\gamma} = u/D$)

估算得到剪切速率大致范围为 $1\sim 500\text{ s}^{-1}$ 。在该范围使用 Power-Law 模型关联较为合宜，能够很好的表述非牛顿 PAAm 水溶液的流变特性：

$$\eta = K\dot{\gamma}^{n-1} \quad (2-5)$$

η 为表观粘度， K 和 n 分别为稠度指数和流动指数，由实验数据回归得到。PAAm 溶液流变参数以及其他的各物性数据见表 2-3。

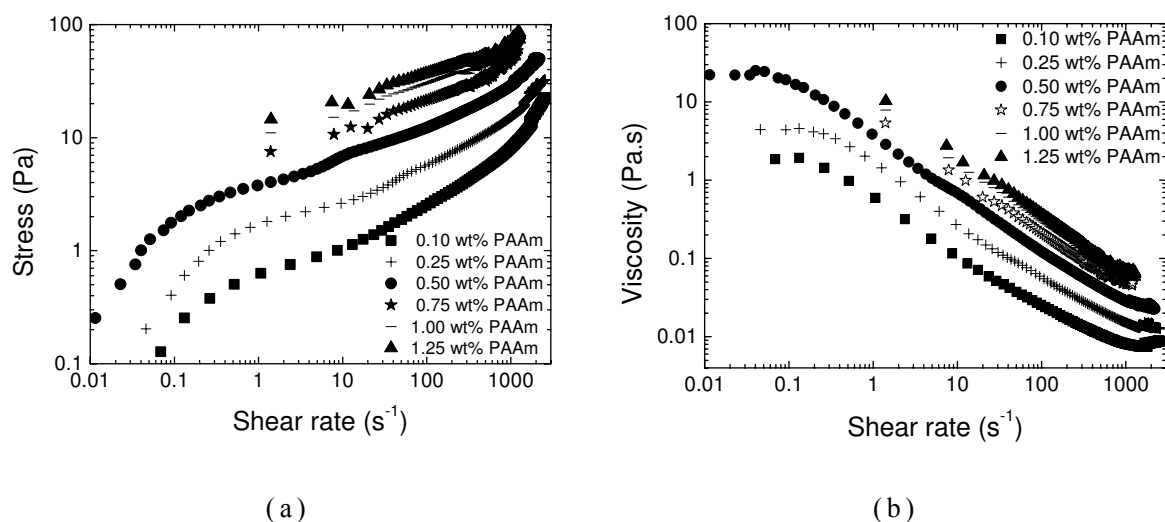


图 2-11 PAAm 溶液流变性质

Fig. 2-11 Rheological behavior of PAAm solutions

表 2-3 PAAm 溶液的物性数据

Fig. 2-3 Physical properties of PAAm solutions

Fluid	Density, ρ ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)	Surface tension, σ ($\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$)	Consistency, K ($\text{Pa}\cdot\text{s}^n$)	Flow index, n
0.10 % PAAm	1000	71.0	0.3413	0.4898
0.25 % PAAm	1000	70.3	1.0484	0.4141
0.50 % PAAm	1000	69.6	2.8681	0.3540
0.75 % PAAm	1000	69.3	4.3199	0.3473
1.00 % PAAm	1000	67.7	7.9112	0.2882
1.25 % PAAm	1000	67.2	10.8480	0.2607

2.2.4 图像处理

本文利用 Matlab 软件对高速摄像机拍摄到的图片进行处理,并利用像素比例计算气泡的生成及运动过程中的特征参数。

第三章 竖直矩形微通道内气液两相流流型特征

本章研究目标是用自制的激光影像系统观测竖直矩形微通道 ($40 \times 240 \mu\text{m}$ 和 $40 \times 160 \mu\text{m}$) 内气液两相流流型。空气为气相流体, 去离子水、乙醇和正丙醇用于液相流体。实验观测到的流型为泡状流、弹状流、环状流、环状一分层流、分层流。分层流之所以出现是因为本实验所用的微通道的深宽比很小 ($h/w_c \leq 0.25$), 表面张力和混合效应共同作用的结果。用气液表观速度为坐标轴画出了流型图, 并与已经报道的数据进行了对比。流型转变线受到微通道的尺寸和液体性质的影响。提出一个基于雷诺数 Re 、韦伯数 We 和深宽比 h/w_c 的流型转变图。对于分层流, 液膜的厚度随着气相流速的增加而减小、随着液相流量的增加和管道宽度的增加而增加。提出了一个预测液膜厚度的关联式, 预测值与实验值吻合良好。

3.1 流型

图 3-1 显示了 $40 \times 240 \mu\text{m}$ 微通道内空气-水两相流的典型流型: 泡状流、弹状流、环状流以及分层流。各流型的特征简述如下:

泡状流: 气相分散在液相里, 形成分离的小气泡, 这些气泡的直径通常比微通道的宽度要小或者与其相等。这种流型通常发生在低气速以及相对的高液速情况下。

弹状流: 这种流型发生在低气液速度情况下。弹状气泡的长度通常比微通道的宽度要大, 其头部通常呈子弹型。与常规尺度下的情况不同的是, 没有形成小的气泡分散在液弹里。

环状流: 在中等气相速度情况下, 观测到环状流。气相被液相包围在中心, 向下游流动。气液两相的界面可以是光滑的, 也可以是蜿蜒状的。

分层流: 在高气速情况下, 观测到分层流。两相界面有时候是光滑的, 有时候是波状的。通常情况下, 光滑界面分层流的比较稳定。

还可以观测到过渡区域: 弹状一分层流和环状一分层流。

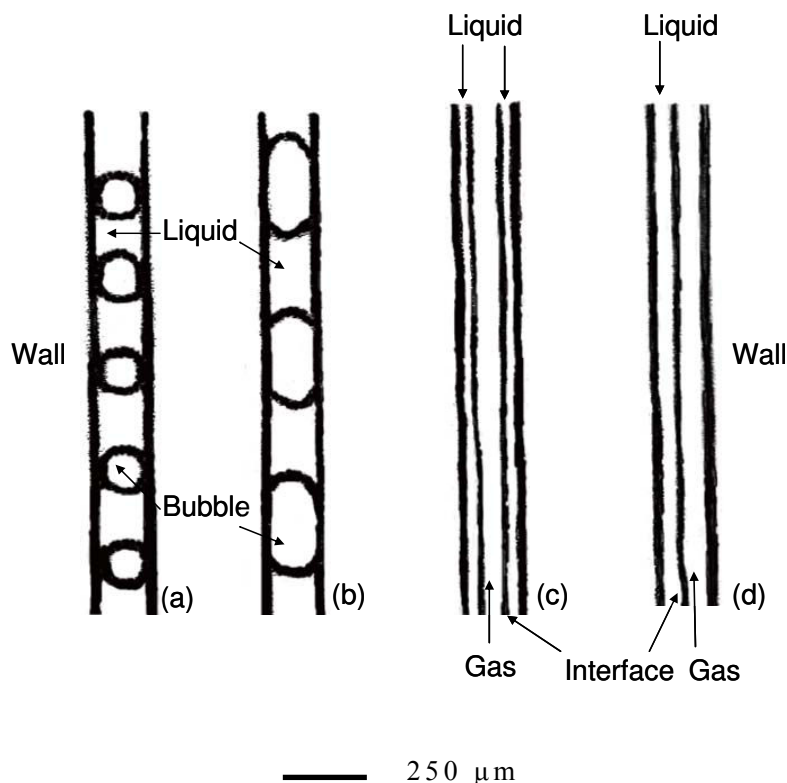


图 3-1 $40 \times 240 \mu\text{m}$ 微通道内空气—水两相流的典型流型图

Fig. 3-1 Representative photographs of flow patterns for air-water two-phase flow in the $40 \times 240 \mu\text{m}$ microchannel, $j_L = 0.2315 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$: (a) bubbly flow, $j_G = 0.1736 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$; (b) slug flow, $j_G = 0.6944 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$; (c) annular flow, $j_G = 1.9965 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$; (d) stratified flow, $j_G = 5.4977 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$

本实验中，竖直矩形的微通道内为什么会出现分层流？在常规水平管内，两相的密度差导致分层流的出现。但是对于常规尺度的竖直管道，并不会出现分层流。竖直常规管道内不会出现分层流是因为重力的作用。微通道内气液两相流中，表面张力将对流型起作用，而不能忽略不计。一些学者报道了竖直圆形或三角形截面的微通道内气液两相流的流型^[38, 39, 42]，可是并没有发现分层流。而微通道内分层流的报道很少。

Biswas 等^[49]报道了直径小于 3 mm 的毛细管内并流向下的气液两相流中出现分层流的现象。在这种小的管道内，表面张力占主导地位，他们也把分层流的出现归因于表面张力。

Galbiati 等^[50]认为这种分层流是一种不稳定的现象，与进口混合方式以及发展段的长度有关。他们在一个短发展段 ($L/D = 350$)

的 Y 型混合器内验证了其假设，并发现在 $L > 350D$ 以后出现弹状流。

Steinbrenner 等^[41]发现在水平的 $500 \times 45 \mu\text{m}$ 矩形硅制微通道内的空气—水两相流中出现分层流。而 Cubaud 等^[47]在水平的方形玻璃、硅制微通道内空气—水两相流中并没有发现分层流。从两者的比较来看，分层流的出现似乎与通道的深宽比有关：前者为 0.09，而后者为 1。低的深宽比情况下，液体附着在引入液相旁路管道一侧的壁面上上升，这就像间距很近的两非常宽大的平板之间的薄膜的流动（本实验中的膜流动方向向上）。

本实验中：(1) 出现层状流的雷诺数 Re 和韦伯数 We 的范围为： $0.18 < Re_G < 42.48$, $0.12 < Re_L < 26.73$, $1.97 \times 10^{-6} < We_G < 0.19$, $1.64 \times 10^{-5} < We_L < 0.26$ 。在这个范围内，表面张力和黏性力要比惯性力重要。下标 G 和 L 表示气相和液相。(2) $L/D = 578 \sim 625$ ，观察窗口位于 $L/D \approx 200$ （在主通道的长度中间位置）。实验用到的气液两相接触处是 T 型结构，截面为矩形。好像 Galbiati 等^[50]的结论可以用来解释本实验中出现的分层流，但是本实验观察到的分层流是一种稳定的流型，与其临近的流型为环状流，而不是弹状流。高气体流速导致气弹横截面积减小，气液界面与管壁距离增大，进一步减小了气液界面周围的剪切应力。达到临界气体流速或气液速率比，剪切应力不能与液环流的圆形界面相平衡，随着一个方向界面的消失，在另一个方向出现了平坦的气液界面，此即形成气液分层流型。(3) 本实验中微通道的深宽比的范围为 $0.17 \sim 0.25$ ，只要气相流量足够大，分层流就会出现，而且出现的范围为： $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1} < j_G < 10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, $0.01 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1} < j_L < j_G^{1.0336}$ 。

从上面的分析可以看出，本实验竖直上升的矩形微通道中出现分层流的原因为：低深宽比 (< 0.25)，表面张力和黏性力 ($0.18 < Re_G < 42.48$, $0.12 < Re_L < 26.73$, $1.97 \times 10^{-6} < We_G < 0.19$, $1.64 \times 10^{-5} < We_L < 0.26$)。

3.2 流型图

图 3-2 为 $40 \times 160 \mu\text{m}$ 微通道内空气—水和空气—正丙醇两相流的流型图和流型转变线。图中的横纵坐标分别为气液表观速度 j_G 和 j_L 。气液两相的流量范围为 $0.001 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1} < j_G < 10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, $0.01 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1} < j_L < 1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 。

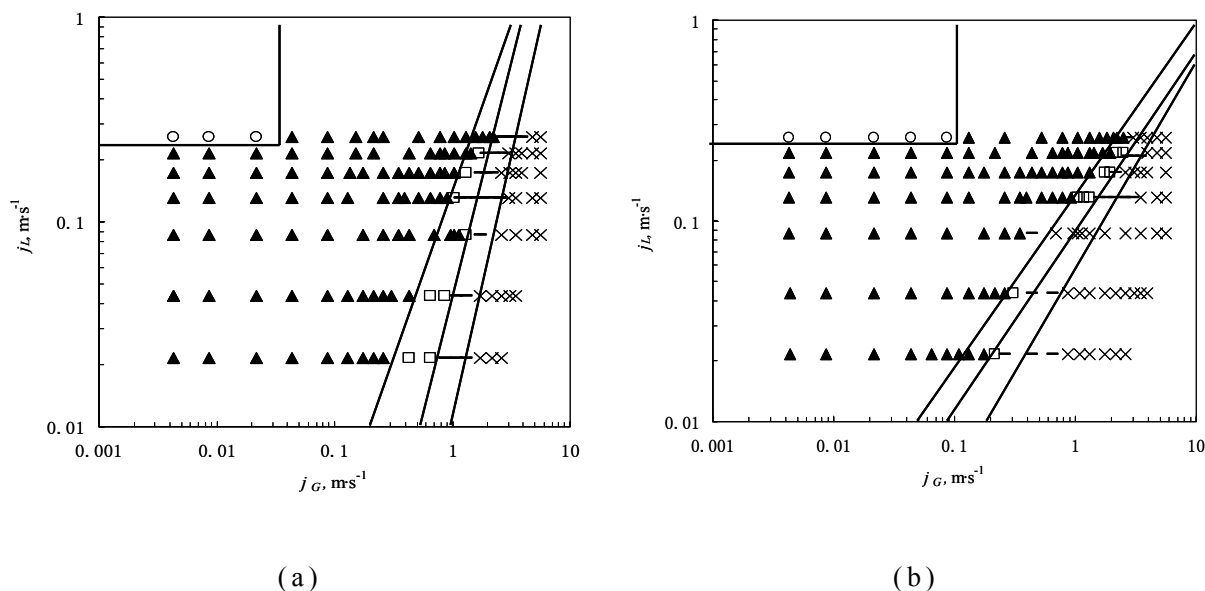


图 3-2 160 × 40 μm 微通道内的流型图以及流型转变线

Fig. 3-2 Flow patterns map and transition lines in 160 × 40 μm rectangular microchannels. Gas-liquid phase: (a) air-water; (b) air-n-propanol. ○ bubbly flow; ▲ slug flow; □ annular flow; — annular-stratified flow; × stratified flow

图 3-2 所示的结果为：(1) 翻腾流 (Churn flow)，在本实验中并没有出现，这个结果与 Galbiati 和 Andreini^[50]报道的结果类似。他们在直径分别为 0.5, 1.1 和 2.0 mm 的圆形管内的竖直向下空气—水两相流中没有发现分层流。(2) 本实验中出现一个新的流型：分层流 (stratified flow)。这个结果与常规尺度下的圆形或者矩形管内竖直向上流的流型不同。常规尺度情况下的流型通常为：泡状流、弹状流、翻腾流和环状流。(3) 流型转变线受液体性质影响。

为了考察管道尺寸对流型转变线的影响，图 3-3 显示了 240 μm 和 160 μm 的微通道内的乙醇—空气两相流的流型转变图，为了研究的方便，把两流型图中的流型转变线画在一个图内。随着管道尺寸的减小，弹状/环状、环状/环状—分层、环状—分层/分层流的转变线向左移动；泡状/弹状流的转变线向左下移动。但是 Ide 和 Kariyasaki^[48]发现竖直向上毛细管内（直径为 1.0 至 4.9 mm）的气

液两相流的流型转变线几乎不受管道尺寸的影响。Zhao 和 Bi^[38] 实验研究了尺寸为 2.886, 1.443 and 0.886 mm 的截面为三角形的竖直向上微通道内空气—水两相流的流型，发现随着管道尺寸的减小，弹状流/翻腾流、翻腾流/环状流的流型转变线向右移动。这个比较结果也说明了流型的转变线还受微通道截面形状、微通道的材料和气液两相混合结构的影响（Weinmueller 等^[44]；Shao 等^[45]）。而且，对于大的圆形管道而言，随着管道尺寸的减小，翻腾流/环状流转变线不受管道尺寸的影响（Taitel 等^[127]）。

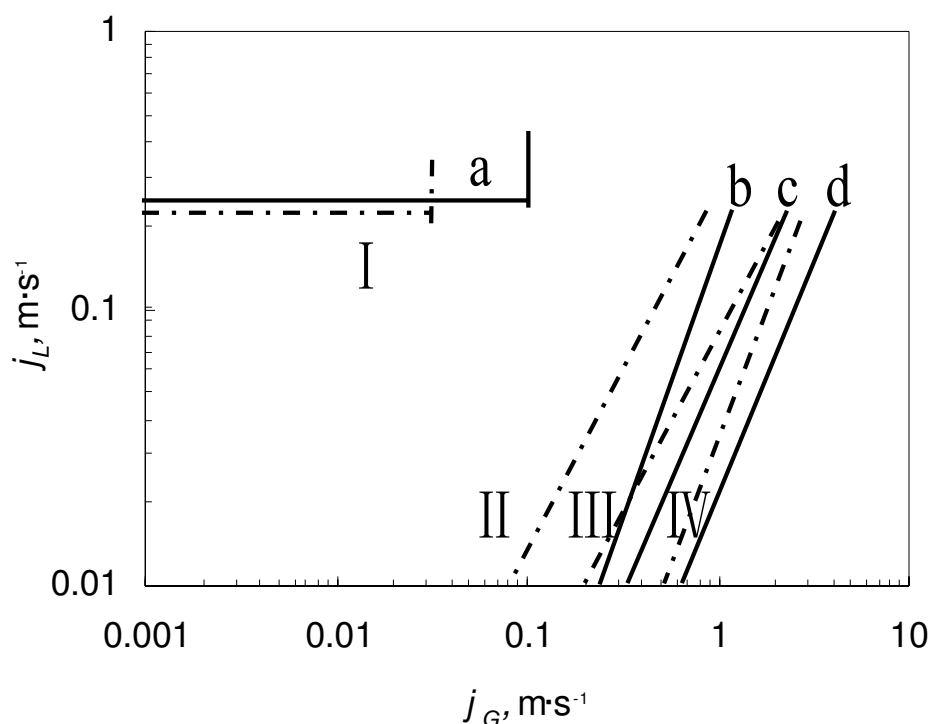


图 3-3 管道尺寸对流型转变的影响

Fig. 3-3 Effect of channel size on the flow patterns. a - d: transition lines in 240 μm wide microchannel; I-IV: transition lines in 160 μm wide microchannel. a, I: bubbly/slug; b, II: slug/annular; c, III: annular/annular-stratified; d, IV: annular-stratified/stratified

流型转变线受到流体性质和管道尺寸的影响，所以需要有一个适用性更广泛的流型判别图。但是一个包括很多参数的流型转变图是不现实的，因为影响流型转变的因素确实很多：流型性质、管道的截面形状和尺寸、管道的材料以及管道的粗糙度（Waelchli 和 von

Rohr^[40])。本实验都是在常温下进行的，而且管道的材料均为玻璃，采用同样的工艺进行微通道的加工，所以假设管道的粗糙度一样。所以，竖直向上的矩形玻璃微通道内气液两相流流型普适图中应该包含的参数为：微通道的深宽比、流体性质、气液表观速度和微通道的水力学直径，用到的无量纲参数为：管道的深宽比 h/w_c ，雷诺数 Re 和韦伯数 We (Akbar 等^[34]; Waelchli 和 von Rohr^[40])。在大多数情况下，流型转变线呈指数的关系，假设流型转变线可以表示为：

$$Re_L We_L = a(Re_G We_G)^b (h/w_c)^c \quad (3-1)$$

表 3-1 列出了式 3-1 中的参数值 a , b , c ，用最小二乘法对实验中两个微通道，三对流体共六组实验中的流型转变进行归纳得出的数值。实验参数范围 $0.018 < Re_G < 42.48$, $0.12 < Re_L < 26.73$, $9.50 \times 10^{-9} < We_G < 0.19$, $1.64 \times 10^{-5} < We_L < 0.26$, $0.17 < h/w_c < 0.25$ 。

表 3-1 式 3-1 中的参数值

Table 3-1 Values of a , b and c in Eq. 3-1

B/S			S/A			A/A-ST			A-ST/ST		
a	b	c	a	b	c	a	b	c	a	b	c
3.16	0.05	-0.13	9.55	0.98	-0.28	0.87	0.86	-0.33	1.55	1.05	0.40

图 3-4 显示了归纳得出的普适性流型图与实验值的比较。对于弹状/环状、环状-分层/分层流转变线来说，预测值与实验值吻合良好。普适性流型图可以在一定范围内预测竖直向上微通道内气液两相中的弹状流和分层流。

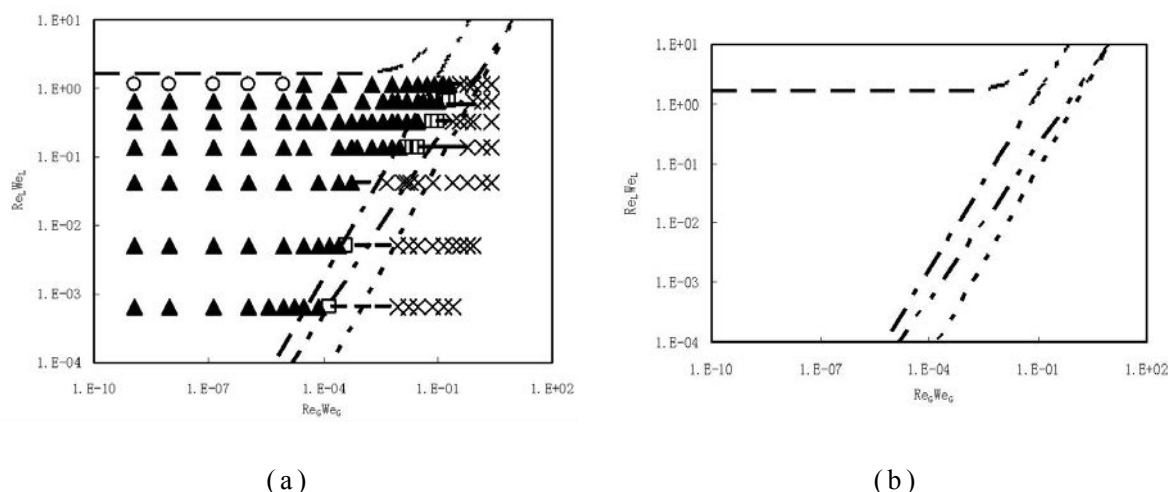


图 3-4 推导得出的普适性流型图与实验数据的比较

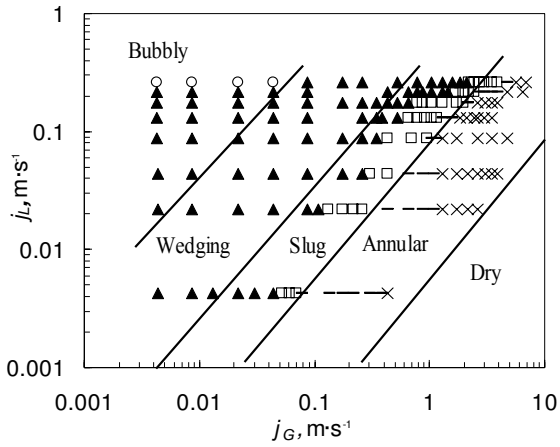
Fig. 3-4 Flow pattern maps using the universal transition lines in two different rectangular microchannels using various fluids: (a) $160 \times 40 \mu\text{m}$, n-propanol-air; (b) $160 \times 40 \mu\text{m}$, flow pattern map using the universal transition lines. \circ bubbly flow; \blacktriangle slug flow; \square annular flow; $-$ annular-stratified flow; \times stratified flow

3.3 与报道的实验值的对比

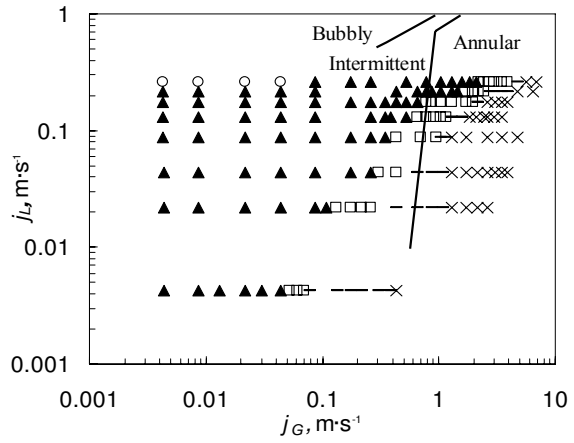
本实验中 $40 \times 160 \mu\text{m}$ 微通道内乙醇—空气两相流的流型图与一些已报道的实验值的对比如图 3-5 所示。所选择用于对比的实验值都经过了仔细的筛选，与本实验有类似的尺寸和实验条件。

Cubaud 和 Ho^[47]报道了水平放置的 200 和 $525 \mu\text{m}$ 方形截面的微通道内空气—水两相流的流型图，如图 3-5a 示。好像 Cubaud 和 Ho^[47]实验中的楔形/弹状流和弹状/环状流流型转变线分别与本实验中弹状/环状以及环状—分层/分层流流型转变线相吻合，除了 Cubaud 和 Ho^[47]实验中的流型区域比本实验中的区域要宽。他们的楔状流和弹状流的流型区域要比本实验中的弹状流区域大很多。

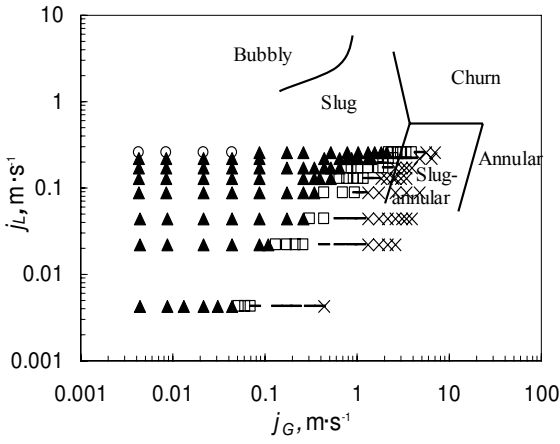
Waelchli 和 von Rohr^[40]在水平放置的 $218 \mu\text{m}$ 的矩形微通道内进行了氮气—水两相流流型实验，如图 3-5b 所示。与他们实验中的间歇/环状流型转变相比，本实验中弹状/环状流型转变发生在比较小的气体流速下。Waelchli 和 von Rohr^[40]定义的间歇流包括弹状流和活塞流。



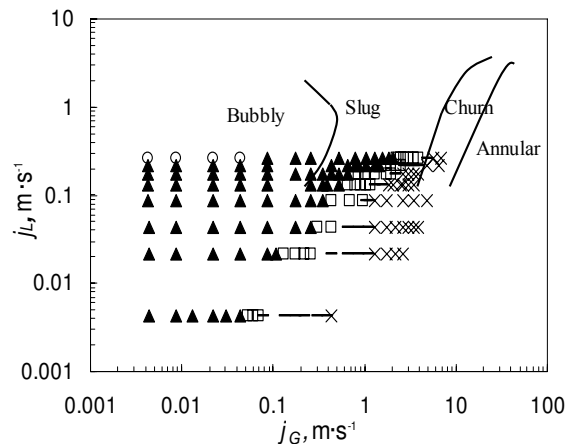
(a)



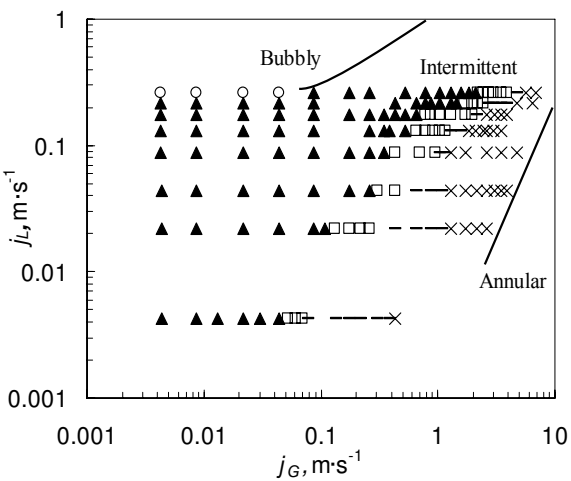
(b)



(c)



(d)



(e)

图 3-5 实验数据与已有报道对比
 Fig. 3-5 Two-phase flow pattern maps for several authors compared with the present experimental data for ethanol-air two-phase flow in T160. Experimental data: \circ bubbly flow; \blacktriangle slug flow; \square annular flow; $-$ annular-stratified flow; \times stratified flow. The transition lines proposed by several authors: (a) Cubaud and Ho^[47]; (b) Waelchli and Von Rohr^[40]; (c) Triplett *et al.*^[46]; (d) Zhao and Bi^[38]; (e) Ide and Kariyasaki^[48]

图 3-5c 显示了本实验结果与 Triplett 等^[46]的比较结果。Triplett 等^[46]在 1.09 mm 的水平三角形截面的微通道内进行了实验，观测到五个主要的流型：泡状流、弹状流、弹状—环状流、环状和翻腾流。Triplett 等^[46]得到的弹状/弹状—环状、弹状—环状/环状发生在比较高的气体流速情况下。

图 3-5d 所示为与 Zhao 和 Bi^[38]的实验值的对比结果。Zhao 和 Bi^[38]实验在竖直的 886 μm 的三角形截面的空气—水两相流中进行。两者的流型转变的趋势很相近。Zhao 和 Bi^[38]实验中的流型转变都发生在较高的气体流速下，而且出现了翻腾流。

图 3-5e 所示为与 Ide 和 Kariyasaki^[48]的比较结果。Ide 和 Kariyasaki^[48]在水力学直径范围为 1.00-4.9 mm 的矩形向上微通道内进行了实验，观测到三种流型：泡状流、间歇流和环状流。两者的流型转变线都有相同的转变趋势。与本实验值相比，Ide and Kariyasaki^[48]得到的间歇/环状流转变线向高的气体流速移动。

尽管 Cubaud 和 Ho^[47] (2004)、Zhao 和 Bi^[38] (2001)、Ide 和 Kariyasaki^[48]得到的流型转变线与本实验得到的转变线相似，但是还是很难根据他们得到的流型图来直接判别本实验出现的流型。

3.4 与已有模型的对比

判别竖直管道内气液两相流的流型的常用理论模型由 Taitel 等^[127]、Mishima 和 Ishii^[128]提出，下面将本实验结果与这两个模型提出的判别式进行对比。

40 \times 160 μm 微通道内乙醇—空气两相流的流型实验中，管道的水力学直径可以定义为：

$$D_H = \frac{2(h \times w_c)}{(h + w_c)} = \frac{2(40 \times 160)}{(40 + 160)} = 64 \mu\text{m} \quad (3-2)$$

3.4.1 与 Taitel 模型的对比

Taitel 等^[127]提出了一个泡状流向弹状流的转变线判别式：

$$j_L = 4.0 \left\{ \frac{D_H^{0.429} (\sigma/\rho_L)^{0.089} \left[\frac{g(\rho_L - \rho_G)}{\rho_L} \right]^{0.446}}{\mu_L^{0.072}} \right\} - j_G \quad (3-3)$$

这个式子在图 3-6 中用曲线 A 表示。在曲线 A 以上，出现泡状流。曲线 A 终止于气含率为 $\alpha = 0.52$ 的时候：用曲线 B 表示。气含率定义为：

$$\alpha = \frac{j_G}{j_G + j_L} \quad (3-4)$$

泡状流出现的曲线 A 的上方和曲线 B 的左方。曲线 B 下方主要为弹状流。

弹状流向翻腾流的转变可以表示为：

$$\frac{L_E}{D_H} = 40.6 \left(\frac{j_L + j_G}{gD_H} + 0.22 \right) \quad (3-5)$$

L_E 是管道的进口段长度。本实验中， L_E 表示从 T 型接触处到主管道中间的距离 (Liu and Wang^[42])。式 (3-5) 用曲线 C 表示。曲线 C 终止于曲线 D，表示为：

$$j_L = 3.0j_G - 1.15 \left(\frac{g(\rho_L - \rho_G)\sigma}{\rho_L^2} \right)^{1/4} \quad (3-6)$$

弹状流出现在曲线 A 的下面和曲线 C 及 D 的左方，翻腾流出现在曲线 B 的下方和曲线 C 的右方。当气相流速变大的时候，出现环状流。翻腾流和环状流的转变线可以表示为：

$$\frac{j_G \rho_G^{1/2}}{[g(\rho_L - \rho_G)\sigma]^{1/4}} = 3.1 \quad (3-7)$$

这个转变线用曲线 E 表示。曲线 E 的右方主要为环状流。

图 3-6 显示了 $160 \times 40 \mu\text{m}$ 微通道内空气—乙醇两相流的实验值和 Taitel 等^[127]模型的结果。理论预测值与实验值有一定的出入。分别与曲线 A 和 B 预测的结果相比，实验中的泡状流出现在较高的液体流速和较低的气体流速情况下。实验中得到的弹状流的流型区域比预测的流型区域要宽很多。对于弹状流流区，用曲线 C 预测的气体流速比实验值要大。用曲线 B, C, E 预测的翻腾流包括本实验中的弹状流、环状流、环状流—分层流以及分层流。本实验中，环状流出现的气体流速要比曲线 E 预测值小很多。实验值与 Taitel 等^[127]模型的结果说明：模型结果并不能推广到低深宽比

的矩形截面微通道内的气液两相流中，但是模型结果能很好的预测大圆形管道内的流型转变（Taitel 等^[127]）。

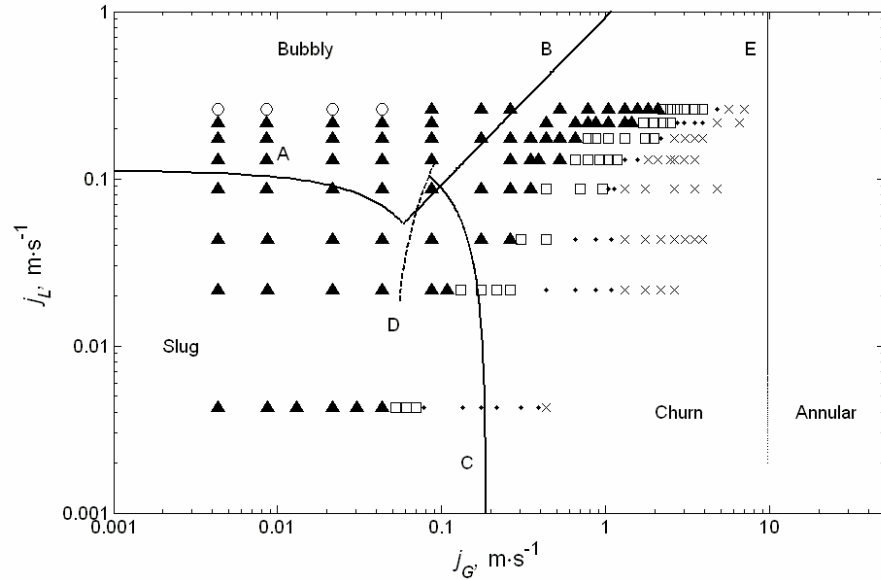


图 3-6 实验数据与 Taitel 等^[127]建立的模型的对比

Fig. 3-6 Comparison of the experimental data with the model proposed by Taitel *et al.* ^[127]. Microchannel: 160 × 40 μm, ethanol-air two-phase flow. ○ bubbly flow; ▲ slug flow; □ annular flow; · annular-stratified flow; × stratified flow

3.4.2 与修正的 Mishima 和 Ishii 模型的对比

Mishima 和 Ishii^[128]认为空含率 α 是一个能预测流型的简单参数。他们建立了适用于竖直管道内竖直向上的气液两相流的流型转变模型。Hibiki 和 Mishima^[129]发展了 Mishima 和 Ishii^[128]提出的模型，使其适用于窄矩形通道内。修正模型如下：

泡状流与弹状流的流型转变可以表示为：

$$j_L = \left(\frac{1}{\alpha C_0} - 1 \right) j_G - \frac{\sqrt{2}}{C_0} \left(\frac{\sigma g (\rho_L - \rho_G)}{\rho_L^2} \right)^{1/4} (1 - \alpha)^{1.75} \quad (3-8)$$

其中

$$C_0 = 1.35 - 0.35 \sqrt{\frac{\rho_G}{\rho_L}} \quad (3-9)$$

$\alpha = 0.2$ 当 $h < D_H$ 时。在本实验中, $h = 40 \mu\text{m}$, $D_H = 64 \mu\text{m}$ 。

式 3-8 在图 3-7 中用曲线 A 表示。曲线 A 的左边主要出现泡状流、右边主要为弹状流。

在下面的情况下, 弹状流向翻腾流发展:

$$\alpha \geq \alpha_m \quad (3-10)$$

α 表示整个管道内的平均气含率, 可以用漂移—通量模型计算:

$$\alpha = \frac{j_G}{C_0(j_G + j_L) + \left(0.23 + 0.13 \frac{h}{w_c}\right) \sqrt{\frac{(\rho_L - \rho_G) g w_c}{\rho_L}}} \quad (3-11)$$

α_m 表示弹状—泡状流的平均气含率, 可以表示为:

$$\alpha_m = 1 - 0.813 \times \left\{ \frac{\left((C_0 - 1)(j_G + j_L) + \left(0.23 + 0.13 \times \frac{h}{w_c}\right) \sqrt{\frac{(\rho_L - \rho_G) g w_c}{\rho_L}} \right)^{0.75}}{\left((j_G + j_L) + 0.15 \times \left[\frac{128 \times \mu \times w_c^2}{4.4881 \times (\rho_L - \rho_G) g h D_H (w_c + h)^2} \right]^{-1} \right)} \right\} \quad (3-12)$$

式 3-10 用图 3-7 中的曲线 B 来表示。

在较高的气液流速下, 弹状流只出现于曲线 D 的左边, 可以表示为:

$$j_G \geq \left(\frac{\sigma g (\rho_L - \rho_G)}{\rho_G^2} \right)^{1/4} \left\{ \frac{\mu}{\left[\rho_L \sigma \sqrt{\frac{\sigma}{g (\rho_L - \rho_G)}} \right]^{1/2}} \right\}^{-0.2} \quad (3-13)$$

翻腾流向环状流的转变可以表示为:

$$j_G = \sqrt{\frac{3gD_H(\rho_L - \rho_G)}{2\rho_G}} (\alpha - 0.11) \quad (3-14)$$

在图 3-7 中用曲线 C 表示。 α 应该满足式 3-10 的条件。

曲线 B 分别与曲线 C 和曲线 D 相交。环状流出现在曲线 B、C、D 构成的区域。

图 3-7 显示了 $160 \times 40 \mu\text{m}$ 微通道内的实验值与 Mishima 和 Ishii^[128] 的修正模型的结果。预测的泡状流区域比实验得到的区域要大很多。实验中，泡状流只出现在较高的液体流速和较低的气体流速下。由曲线 A, B 和 D 构成的弹状流区域，能很好的预测实验结果，但是预测的区域比实验得到的区域要小很多。预测得到的翻腾流出现在曲线 B 的右方，曲线 C 的左方。实验中，这个区域由环状流和环状—分层流构成。模型中，曲线 B、C、D 构成的环状流区域在较高的液体流速和较低的气体流速情况下，能很好的预测实验结果。在本实验中，在较高的气体流速下，会出现分层流，而 Mishima 和 Ishii^[128] 的修正模型中并没有这个流型。

Taitel 等^[127]模型和 Mishima and Ishii^[128]修正模型的预测结果与本实验水力直径小于 $100 \mu\text{m}$ 的矩形微通道内的结果都有一定的差别。这也许是由于模型中的结果均适用于直径大于 1 mm 的管道。

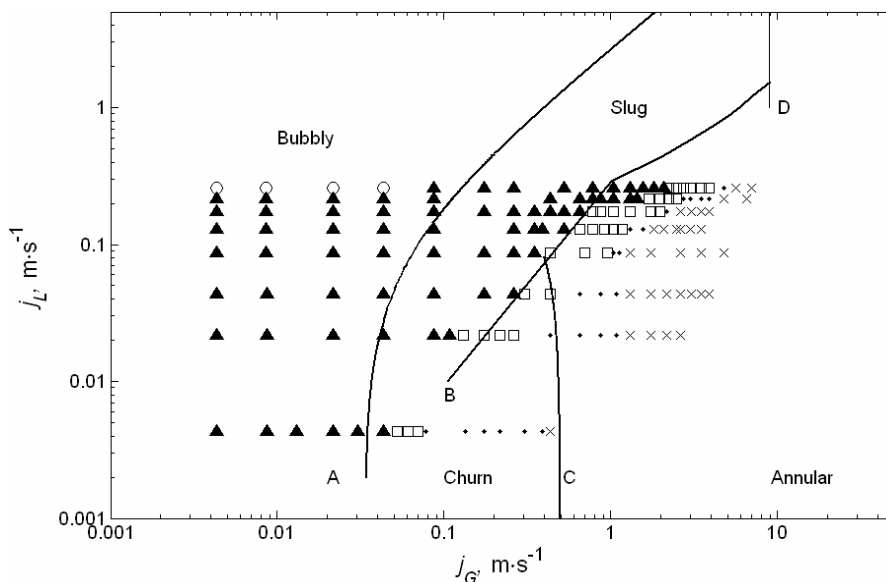


图 3-7 实验数据与 Mishima and Ishii 修正模型^[128]的对比

Fig. 3-7 Comparison of the experimental data with the modified Mishima and Ishii^[128] model by Hibiki and Mishima^[129]. Microchannel: $160 \times 40 \mu\text{m}$, ethanol-air two-phase flow. \circ bubbly flow; \blacktriangle slug flow; \square annular flow; \cdot annular-stratified flow; \times stratified flow

3.5 分层流中的液膜厚度

分层流型是本实验中一个特殊现象，其中液膜的厚度随着气液流量、液体性质以及管道直径而变化。

图 3-8 显示了气液流量对液膜厚度的影响。当液体流量一定，液膜厚度随着气体流量的增加而减小。在较低气体流速下，液膜厚度下降比较快，在这个范围内，液膜比较厚。在较高的气体流速下，液膜厚度随着气体流量的增加而下降比较慢，并趋向于一个最小值。液体流量越大，液膜越厚。

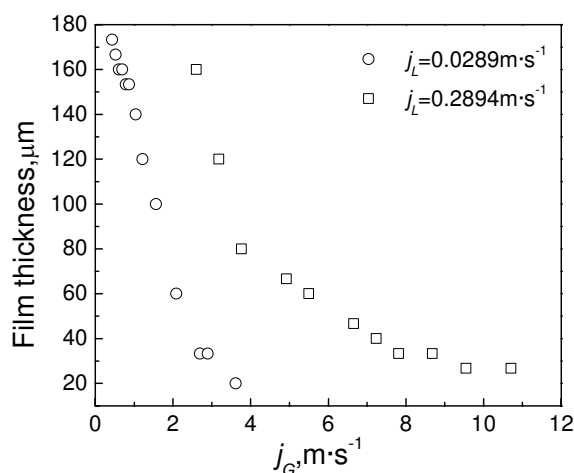


图 3-8 气液流量对液膜厚度的影响

Fig. 3-8 Effects of gas and liquid flow rates on the liquid film thickness.

Microchannel: $240 \times 40 \mu\text{m}$, liquid phase: ethanol, gas phase: air

液体物理性质和管道尺寸对液膜厚度的影响见图 3-9。在一定的气液流量下，当液体逐渐用水、乙醇、正丙醇的时候，液膜逐渐变厚。在一定的气液流量比的情况下，液膜随着管道尺寸的增加而增加。

气液流量、液体的粘度和表面张力影响液膜厚度。通过最小二乘法将实验得到的无量纲液膜厚度 θ/w_c 与雷诺数 Re 、韦伯数 We 以及气液流量比 j_G/j_L 进行关联，结果如下：

$$\frac{\theta}{w_c} = 6.03 \left(\frac{j_G}{j_L} \right)^{-0.81} Re_L^{-0.28} We_L^{-0.09} \quad (3-15)$$

相对误差为 24.71%， θ 表示液膜厚度。其中： $0.018 < Re_G < 42.48$ ， $0.12 < Re_L < 26.73$ ， $9.50 \times 10^{-9} < We_G < 0.19$ ， $1.64 \times 10^{-5} < We_L < 0.26$ 。这个表达式说明：虽然液膜厚度也受液体物理性质的影响，但是受气液流量比的影响比较大。该表达式可以用来预测矩形玻璃微通道内液膜的厚度。

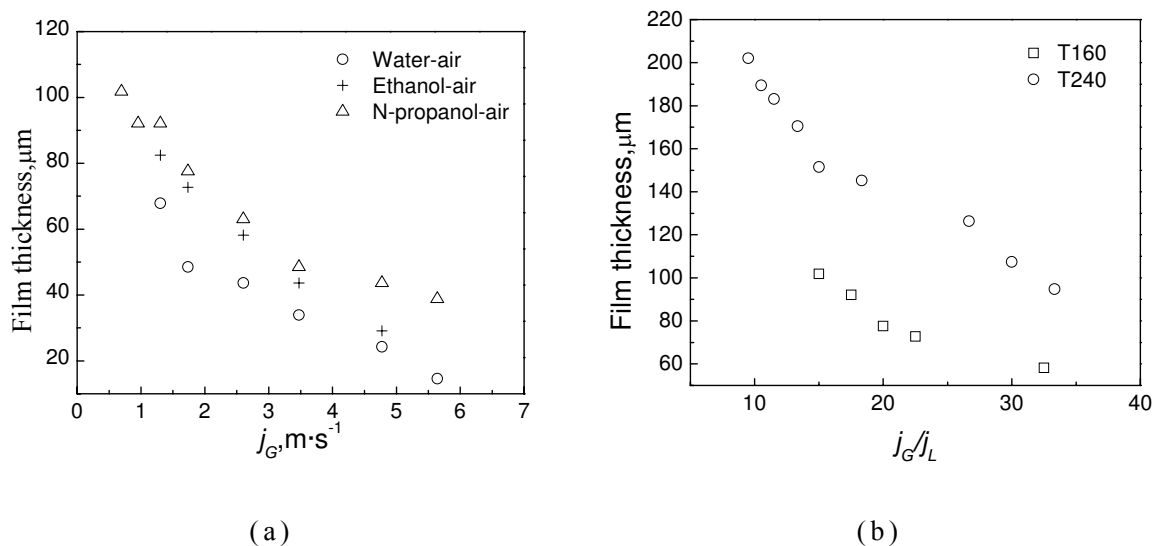


图 3-9 流量和管道尺寸对液膜厚度的影响

Fig. 3-9 Effects on the film thickness: (a) liquid phase, microchannel: $160 \times 40 \mu\text{m}$, $j_L = 0.0868 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$; (b) channel size, $j_L = 0.1736 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, liquid phase: n-propanol, gas phase: air. T160 and T240 mean $160 \times 40 \mu\text{m}$ and $240 \times 40 \mu\text{m}$ microchannel respectively

3.6 结论

本章用自制的激光影像测量系统研究了深宽比为 $40 \times 240 \mu\text{m}$ 和 $40 \times 160 \mu\text{m}$ 的矩形微通道内竖直向上的气液两相流的流型特征，得到的结论如下：

(1) 观测到泡状流、弹状流、环状流、环状—分层流以及分层

流。分层流出现的原因归因于低深宽比、表面张力和黏性力、以及混合效应： $0.17 < h/w_c < 0.25$, $0.18 < Re_G < 42.48$, $0.12 < Re_L < 26.73$, $1.97 \times 10^{-6} < We_G < 0.19$, $1.64 \times 10^{-5} < We_L < 0.26$ 。

(2) 以气液表观流速为坐标图绘制了流型转变图。流型转变线受流体的性质和管道尺寸的影响。弹状/环状流、环状/环状—分层流、环状—分层流/分层流的流型转变线随着管道尺寸的减小而向左移动，而泡状/弹状流随管道的减小向左下移动。

(3) 用无量纲数深宽比 h/w_c ，雷诺数 Re ，韦伯数 We 为基础从实验中归纳出一个普适流型转变图。各参数的范围为： $0.018 < Re_G < 42.48$, $0.12 < Re_L < 26.73$, $9.50 \times 10^{-9} < We_G < 0.19$, $1.64 \times 10^{-5} < We_L < 0.26$, $0.17 < h/w_c < 0.25$ 。提出的普适性流型图能预测竖直管道内气液两相流中的弹状流和分层流流型。

(4) 本实验数据与已有的流型判别图进行了比较。尽管 Cubaud 和 Ho^[47]、Zhao 和 Bi^[38]、Ide 和 Kariyasaki^[48]报道的流型转变线与本实验中得到的流型转变线相似，但还是很难根据已有的流型转变图来准确地判断实验中出现的流型以及流型条件。

(5) 本实验数值与 Taitel 等^[127]模型、修正的 Mishima 和 Ishii^[128]模型^[129]进行了对比。模型预测的流型转变线并不适用于本实验直径小于 $100 \mu\text{m}$ 的矩形微通道内的流型转变的判别。

(6) 对于分层流，液膜的厚度随着液体流量和管道尺寸的减小而减小，随着气体流量的增加而减小；当液体逐渐用水、乙醇、正丙醇的时候，液膜逐渐变厚。提出了一个计算液膜厚度的关联式，可以用来计算分层流中液膜的厚度和指导微通道的设计。

(7) 本实验提供了直径小于 $100 \mu\text{m}$ 的竖直微通道内气液两相流的流型数据，为微通道内气液两相传质以及微设备的设计打下一定的基础(Zhang 等^[17]; Shao 等^[45])。

第四章 气泡在微通道内的生成及流动特性

本章研究了微通道内气泡的生成和流动特性。具体研究了 T 型微通道内气泡的生成；单相微流体的 micro-PIV 测量；聚焦流十字型微通道内气泡的生成；含有突扩结构的微通道内气泡的流动行为；含有环路的微通道内气泡的流动行为。

4.1 气泡在错流 T 型微通道内的生成

本节用高速摄像机研究了氮气气泡在 T 型(T120)微通道内生成过程的挤压—滴流 (squeezing-to-dripping) 转变机理。含有不同浓度的表面活性剂十二烷基硫酸钠 SDS(0-0.5 wt%) 的甘油—水(0-62 wt%) 混合物用于牛顿流体。按气泡生成类型的不同将流区分为挤压区、滴状区和转变区。分析了各流区内气体头部所受到的作用力。不同流区内气泡的生成尺寸可以分别用气液流量比和毛细管数进行关联。并用两步模型 (“two-step model”)^[60] 分析了气泡的生成过程。实验考察了连续相非牛顿流体 PAAm 溶液 (0.1-0.5 wt%) 的流变性质对气泡生成的影响。

4.1.1 气泡在牛顿流体中的生成

4.1.1.1 产生气泡类型

实验条件为：气液表观速率范围 $0.003 < u_{g,l} < 11.8 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ，流体粘度范围为 $0.92 < \mu_l < 10.2 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ ，表面张力范围为 $31.5 < \sigma < 72 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ ，毛细管数范围为 $0.0007 < Ca < 0.056$ ，雷诺数范围为 $0.12 < Re < 40.8$ ，韦伯数范围为 $7.9 \times 10^{-5} < We < 2.28$ 。产生的气泡可以分为两种类型：长度大于管道宽度的弹状气泡和直径小于管道宽度的小气泡（见图 4-1），两种气泡产生的机理不同，而且比较长的弹状气泡和长度接近于管道宽度的弹状气泡的产生机理也不同，主要由于控制力不一样，产生各类型气泡的条件可以根据连续相的毛细管数和分散相的体积流量来区分，第一种气泡的产生的区域为挤压区，第二种气泡产生的区域为滴状区，两者中间的区域为过渡区^[62, 68, 69]。各个区域的

范围如图 4-1 示。

图 4-1 所示的各流型区域的范围分别为：

$L/w_c > 2.5$ 时的弹状流，产生的范围为 $10^{-4} < Ca < 0.0058$ ，这时候连续相产生的剪切力远远小于表面张力，不足以夹断气体头产生气泡，这个时候两相流流体起主要作用，气泡夹断过程主要由气体头生成过程中产生的气液两相压力降控制，这个区域称为挤压区 [65, 68, 69]；

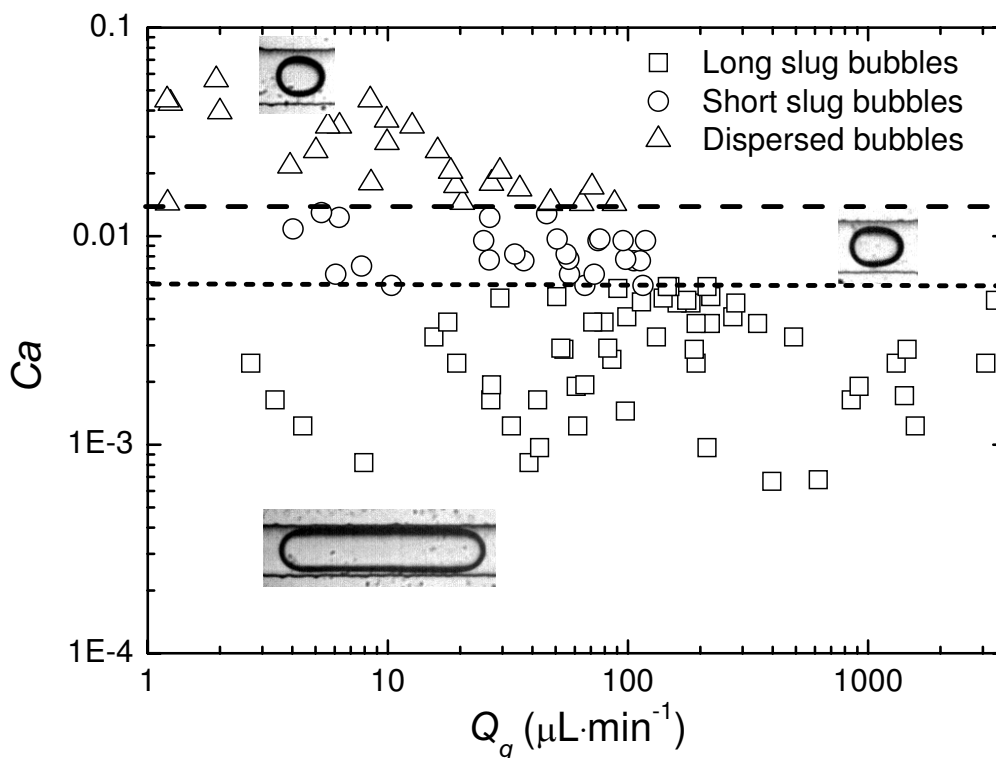


图 4-1 气泡生成流型图

Fig.4-1 Two-phase flow patterns under different capillary number Ca . The dashed line is the transition line for the dripping regime and the transition regime; the short dashed line is the transition line for the transition regime and the squeezing regime

$\sqrt{L/w_c \cdot w_b/w_c} < 1$ 时的泡状流，产生的范围为 $0.013 < Ca < 0.1$ ，这个时候连续相产生的剪切力足以夹断气体头产生气泡。这种情况下气泡生成过程主要由剪切力和表面张力共同作用，这个区域称为滴状区 [68, 69]；

$L/w_c < 2.5$ ， $1 < \sqrt{L/w_c \cdot w_b/w_c}$ 时的弹状流，产生的范围为

$0.0058 < Ca < 0.013$ ，这个区域产生的气泡主要由以上两种机理共同作用，这个区域称为过渡区^[62, 68, 69]。

下面分别说明各个区域内气泡的生成过程、影响气泡生成尺寸的因素和气泡生成机理。

4.1.1.2 挤压区内弹状气泡生成

气泡生成过程用高速摄像机进行记录。图 4-2 显示了弹状气泡生成过程的演变图，可以看出，气泡生成过程很快，周期只有数十毫秒。弹状气泡的生成过程可以分为三个阶段：第一个阶段为膨胀阶段，历经的时间称为膨胀时间 t_e ，气液两相流体在 T 型接触处形成一个界面，气相主体持续不断的往头部提供气体，并向主通道内渗透，并形成头部，主要在径向方向膨胀，直到顶部接触到（快接触到）对方管道壁面，形成一个颈部；第二个阶段为夹断阶段，历经的时间称为夹断时间 t_c ，主管道内的连续相流体使气体头部在下流方向变形，上流方向的气液界面向下游移动，气相头颈部也向下游发展，颈部与引入气体管道和下游管道的角的最小距离 W_m 也逐渐较小，直到最后夹断脱离，形成一个新的气泡。第三个阶段就是最后夹断脱离阶段，历经的时间称为脱离时间 t_p ，一般来说，气泡脱离阶段很快完成，所以 t_p 在本过程可以忽略不计。

图 4-3 和图 4-4 分别显示了弹状气泡顶部和颈部的演变过程。

在膨胀阶段，气体头的生长过程主要由气相控制；而在夹断阶段，气相头的演变过程主要由两相共同控制。所以，气相顶部在第一阶段的速率比第二阶段小（如图 4-3 示）。夹断时间 t_c 比膨胀时间 t_e 要大很多。也就是说，气泡的生成过程主要由夹断阶段控制。可以通过改变气液流速来改变气相顶部的速度和各个阶段历经的时间。举例来说，当 $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$ ，液体流量从 $Q_l = 7 \mu\text{L}/\text{min}$ 增加到 $Q_l = 20 \mu\text{L}/\text{min}$ 的时候，气相顶部的速度从 $125.87 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ 降到 $74.77 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ，生成周期从 12.5 ms 缩短到 8 ms ，此时流量对各个阶段的影响是不一样的，对前者来说 $t_e = 1.5 \text{ ms}$ ， $t_c = 11 \text{ ms}$ ，对后者来说， $t_e = 3.5 \text{ ms}$ ， $t_c = 4.5 \text{ ms}$ ；当 $Q_l = 20 \mu\text{L}/\text{min}$ ，气体流量从 $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$ 增加到 $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$ ，气相顶部的速度从 $74.77 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ 增加到 $295.38 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ，生成周期从 8 ms 缩短到 4.5 ms ，后者的 $t_e = 0.5 \text{ ms}$ ， $t_c = 4 \text{ ms}$ 。这就是说气相顶部的速度随着液相

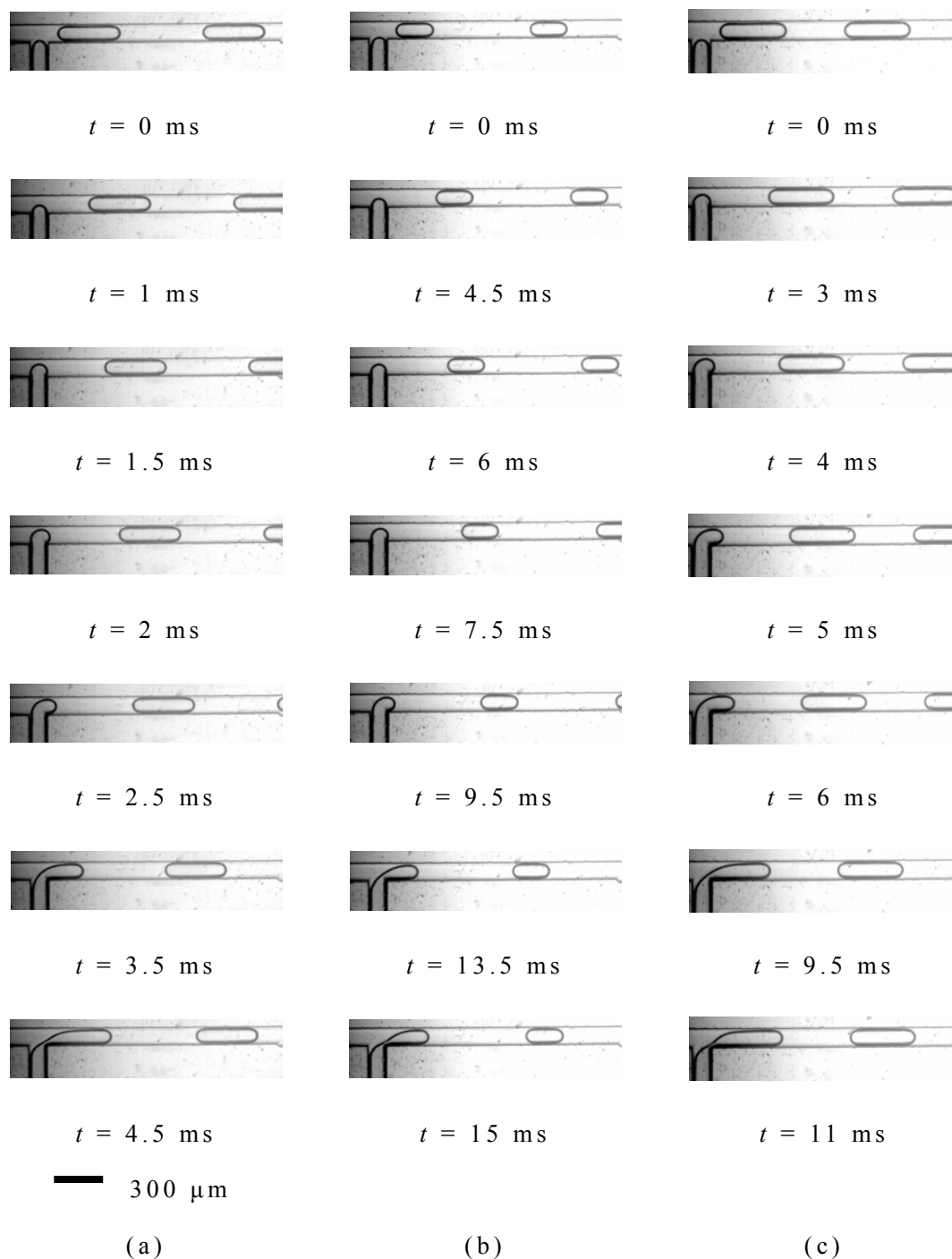


图 4-2 弹状气泡生成过程图

Fig. 4-2 Optical micrographs of the temporal evolution of the periodic break-up procedure. N_2 and water. (a) $Q_l = 7 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$. (b) $Q_l = 15 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$. (c) $Q_l = 15 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$

流量的增加而减小，随着气相流量的增加而增加。生成周期随着两

相流量的增加而减小：当液相流量增加时周期减小，是因为夹断时间的减少量要大于膨胀时间的增加量；当气相流量增加时周期减小，是因为膨胀时间和夹断时间都减小。这说明，夹断时间主要是由液体流量控制；而膨胀时间主要是由气体流量控制的。

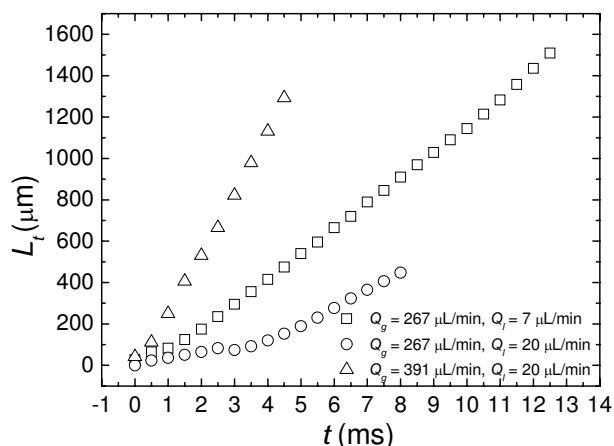


图 4-3 气泡头顶部长度的演变过程

Fig. 4-3 Temporal evolution of the thread tip L_t . T120. Gas phase: N₂; liquid phase: 0.25 wt% SDS aqueous solution

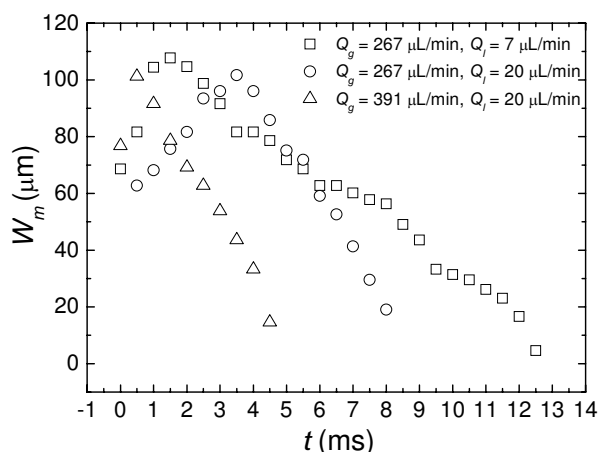


图 4-4 气泡头颈部的演变过程

Fig. 4-4 Temporal evolution of the neck W_m . T120. Gas phase: N₂; liquid phase: 0.25 wt% SDS aqueous solution

图 4-4 显示了气相头颈部的演变过程。颈部在第一阶段和第二

阶段的速度分别称为膨胀速度和夹断速度。颈部在膨胀阶段以较快的速度在较短的时间内达到一个最大值，然后几乎以一个恒定的速度、较长的时间收缩，直至最终脱离。当 $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 7 \mu\text{L}/\text{min}$ ，颈部的膨胀速度为 $26.09 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ，夹断速度为 $8.68 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ 。当 $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$ ，液体流量从 $Q_l = 7 \mu\text{L}/\text{min}$ 增加到 $Q_l = 20 \mu\text{L}/\text{min}$ 的时候，颈部的夹断速度从 $8.68 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ 增加到 $18.36 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ；当 $Q_l = 20 \mu\text{L}/\text{min}$ ，气体流量从 $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$ 增加到 $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$ 的时候，颈部的夹断速度从 $18.36 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ 增加到 $22.49 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ 。这说明颈部的夹断速度主要由液体流量控制，但是略微受气体流量影响。当气体流量一定的时候，夹断速度随着随着液体流量的增加而增加；当液体流量一定的时候，夹断速度随着气体流量的增加而略微增加。

由上面的分析可以知道，气泡的生成过程由气液流量控制。所以，最后气泡生成的尺寸就与气液流量有关。图 4-5 显示了生成气泡的尺寸与气液流量的关系：气泡随着液体流量的增加而减小，随着气体流量的增加而增加。通过分析数据发现，用管道宽度作无量纲处理的气泡的长度与气液流量比呈线性关系，而且系数为 $1/3$ ，正好等于管道的厚度与宽度比： $40/120$ 。这也验证了 Garstecki^[65] 模型（详见 1.2.1.1）也可以用于本实验。

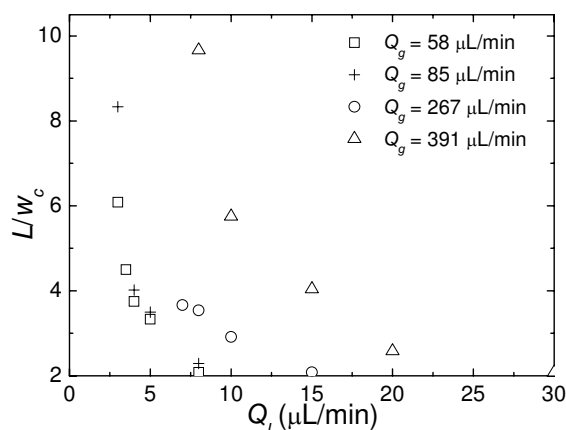


图 4-5 气泡生成的尺寸与气液流量的关系

Fig. 4-5 Effects of gas and liquid flow rates on the bubble size. T120. Liquid phase: water

Garstecki^[65]经过建立模型和受力分析，得出这个区域气泡的尺

寸可以用式 1-14 表示, 而且指出, 该表达式能很好的预测添加了表面活性剂的连续相流体中气泡的生成尺寸。而对于没有加表面活性剂的连续相流体, 由于气泡与壁面之间的流体是静止的, 所以由于粘度引起的能量耗损只产生于液弹中, 所以, 对流体的阻力就比模型中预测的与粘度成反比的值要小。这种情况下, 产生气泡的实际长度要大于该模型的预测值。图 4-6a 给出了含表面活性剂 SDS0.1 wt% 的水溶液中气泡生成尺寸与该模型比较, 从图可以看出, 该模型能很好的预测加入表面活性剂的连续相内生成的气泡的尺寸: $L/w_c = 0.33\phi + 2$ 。由于气液生成过程对气液流量很敏感, 而下流管道气泡的个数和长度又反过来影响气液流量^[85, 130], 所以 Garstecki^[65] 等提出的式 1-14 中的常数“1”应该也是一个可调参数, 在本实验中为“2”。图 4-6b 给出了实验中所有该区域内生成气泡的尺寸与气液流量比的关系: $L/w_c = 0.32\phi + 0.64$, 平均相对误差约为 30%。

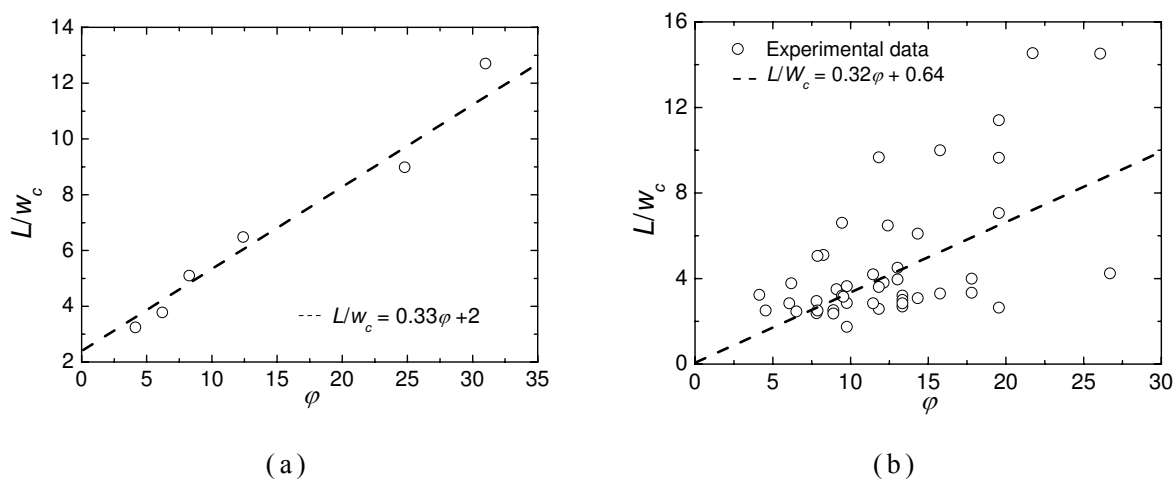


图 4-6 气泡生成尺寸与气液流量比的关系

Fig. 4-6 Relationship between the bubble size and the ratio of gas/liquid flow rates. (a) liquid phase: 0.1 wt% SDS-water mixture, $Q_g = 124 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) all of the experimental data

图 4-7 显示了实验值与 van de Graaf 等^[64]模型 (详见 1.2.1.1, 式 1-15 及 1-16) 的对比。van de Graaf 等^[64]用格子玻尔兹曼 (lattice Boltzmann method, LBM) 模拟了液滴在 T 型微通道内的生成过程, 并用实验进行了验证。他们用“两步法 (two-step process)”模型将液滴生成过程分为两个部分: 第一个部分, 从开始至界面受力平衡

时，液滴生长至一个临界体积 V_g ；然后，由于分散相的连续供给，液滴继续生长 t_c 时间段，直到被夹断，所以最后生成的液滴的体积为两部分体积之和。而且还发现液滴的体积随着毛细管数 Ca 的增加而减小，而随着分散相流量的增加而略微增加。从图中可以看出 van de Graaf 等^[64]模型中对 $100 \times 100 \mu\text{m}$ T型微通道适用的参数并不适用于本文的微通道 T120 内气泡的生成。

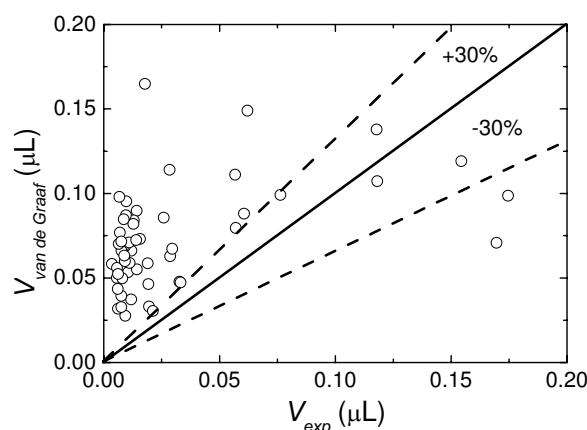


图 4-7 气泡生成体积的实验值与 van de Graaf 等^[64]模型计算值的对比

Fig. 4-7 Comparison of the experimental data with the values calculated by van de Graaf *et al.*^[64] model

4.1.1.3 滴状区内分散气泡生成

在滴状区，剪切力和表面张力控制气泡的生成过程，生成气泡的尺寸可以用连续相的毛细管数来表示（详见 1.2.1.1，式 1-7）。图 4-8 显示了实验中观测到的泡状流与毛细管数的关系，表 4-1 列出了详细的实验数据。 r_{3D} 表示与气泡生成体积相等的球的半径，即气泡的等量半径；其中气泡的体积按椭球形来处理，即 $V = \pi L w_b h / 6$ ， $r_{3D} = \sqrt[3]{3V/4\pi}$ 。在本实验操作条件内，得到的气泡半径与毛细管数的关系为：

$$r_{3D}/h = 0.71Ca^{-0.11} \quad (4-1)$$

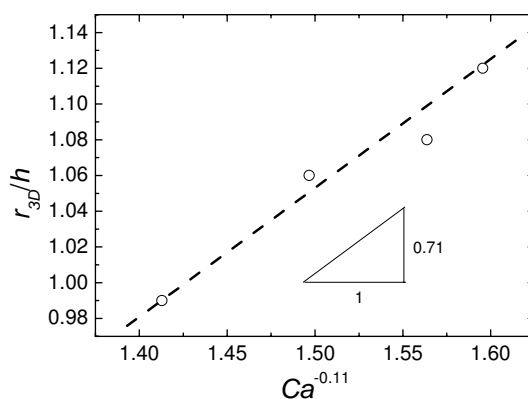


图 4-8 滴状区内生成气泡的尺寸与毛细管数的关系

Fig. 4-8 Relationship between the bubble size and capillary number Ca in the dripping regime for the present experimental data

表 4-1 滴状区内生成气泡的尺寸与毛细管数的关系

Table 4-1 Bubble size with different capillary number in the dripping regime

流体	Q_g ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Q_l ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Ca	r_{3D}/h
50 wt% glycerol	573	60	0.0143	1.12
25 wt% glycerol	573	100	0.0171	1.08
0.25 wt% SDS	573	180	0.0256	1.06
0.25 wt% SDS	473	150	0.0432	0.99

气泡的当量半径接近于管道的深度 h (图 4-8)。为了更进一步验证生成气泡的尺寸与毛细管数的指数关系, 计算了文献^[19]中生成气泡的尺寸和毛细管数的关系, 见图 4-9, 其关系为:

$$r_{3D}/h = 0.98Ca^{-0.25} \quad (4-2)$$

气泡的尺寸范围为 160-310 μm , 而主管道的尺寸为 $300 \times 200 \mu\text{m}$, 但是该文中用的分散相管道比较小, 是直径为 50 μm 的毛细管, 这种尺寸分布比较容易产生较小的气泡。

Xu^[68]通过分析文献中的数据发现当 $Ca > 0.2$ 的时候, 生成的液滴非常小, 几乎对连续相流体的流速和剪切力不产生影响, 尺寸可以表示为:

$$r_{3D}/h \propto Ca^{-1} \quad (4-3)$$

而在 $0.01 < Ca < 0.2$ 的时候, 上式计算的结果比实验值要大, 所以

用表观速度计算的毛细管数需要修正，因为这个时候的分散相尺寸与管道尺寸可比，影响局部的剪切力，修正后的结果为：

$$\frac{r_{3D}}{h} \approx \frac{wh - 0.785d^2}{2wh} \cdot Ca^{-1} \quad (4-4)$$

de Menech 等^[69]通过数值模拟也得出相同的结论，但是分散相生成尺寸的相似率不太一样：

$$\frac{r_{3D}}{h} \approx \frac{w}{2h} \dot{\gamma}_d^{-0.4} \cdot Ca^{-0.4} \quad (4-5)$$

其中 $\dot{\gamma}_d$ 表示液滴头部与墙壁之间空间内的剪切速率 $\dot{\gamma}$ 与整个主管道的剪切速率 u_c/w_c 的比值。

式 4-3 或 4-4，式 4-5，式 4-2，式 4-1 表明预测的分散相随毛细管数的增长速度依次减慢（ Ca 指数依次为 -1、-0.4、-0.25、-0.11）。说明除非分散相尺寸比通道宽度小很多，否则，额外的力（挤压力）对滴状区（dripping regime）内分散相的生成过程不容忽视。

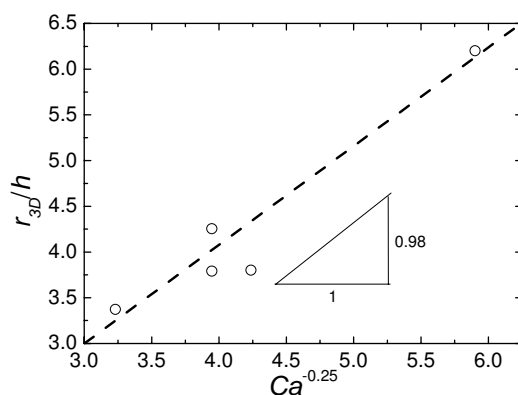


图 4-9 Xu 等^[19]实验中生成气泡的尺寸与毛细管数的关联

Fig. 4-9 Relationship between the bubble size and capillary number Ca from the literature of Xu *et al.* ^[19]

4.1.1.4 过渡区域内气泡生成

在该区域内，气泡尺寸由气液流量和毛细管数共同控制^[62, 68]。本实验中过渡区生成气泡的尺寸与气液流量比和毛细管数的关联式为：

$$\frac{(Lw_b)^{0.5}}{w_c} = 0.26\phi^{0.18}Ca^{-0.25} \quad (4-6)$$

最大相对误差为 25%。其中 w_b 为气泡的宽度，因为这个区域的气泡，其宽度会小于管道的宽度，所以将气泡宽乘以长度并取平方来表示气泡的尺寸。图 4-10 显示了气泡尺寸与流量比和毛细管数的关系图。

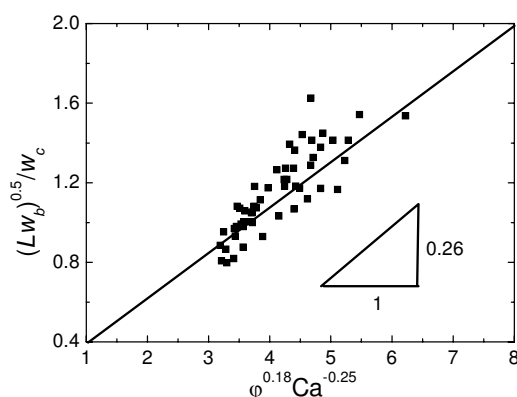


图 4-10 过渡区内气泡尺寸与气液流量比和毛细管数的关联

Fig. 4-10 Relationship between the bubble size and ratio of gas/liquid flow rates and capillary number in the transition regime

Xu^[68]等也得出相似的规律，见式 1-28。Christopher^[62]等对这个区域液滴的生成建立了物理模型，认为液滴的生成的第一个阶段主要受毛细管数的控制，第二个阶段主要由两相流量比控制，所以最终的液滴生成尺寸由两相流量比和毛细管数共同控制（详见 1.2.1.1，式 1-21 至 1-27）。

该区域内见报道的气泡、液滴生成尺寸的数据非常少^[62, 68]，本实验考察了各个操作因素如气液流量比、连续相流体的粘度和表面张力对气泡尺寸的影响。图 4-11a-c 分别给出了气液流量比、连续相流体的粘度和表面张力对气泡生成尺寸的影响。从图中可以看出，气泡的尺寸随着气液流量比的增加而增加，随着连续相流体粘度的增加而减小，表面张力对气泡生成的影响不是很大。这些数据的趋势与已报道的文献相吻合^[19]。表面张力对气泡生成的影响可能原因是：（1）表面张力是阻止气泡脱离的力，而且比黏性力和拉普拉斯压力大很多，虽然改变表面张力值两倍，但是它在气泡生成过

程还是占主导地位，故对最后生成气泡的尺寸几乎没有影响^[81, 120, 120]；(2) 说明气泡生成过程中并不只有黏性力和表面张力，而且还有其他的力^[58]，像挤压力、拉普拉斯力等。

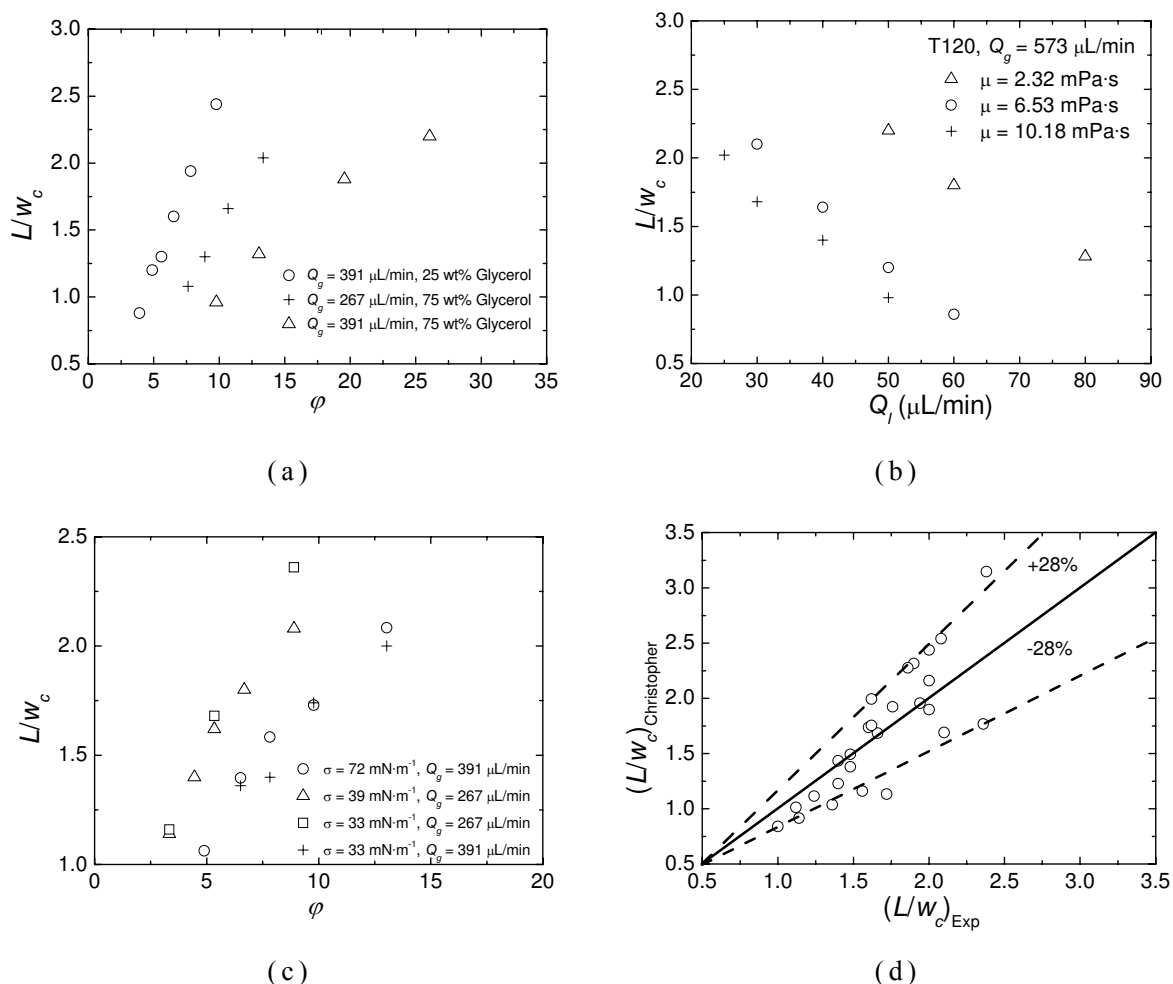


图 4-11 (a)-(c) 操作参数对气泡生成的尺寸的影响；(d) 与 Christopher^[62] 模型计算值的对比

Fig. 4-11 (a)-(c) Effects on the bubble size: (a) flow rates; (b) viscosity, $\sigma = 31.5 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$, $Q_g = 573 \mu\text{L}/\text{min}$; (c) surface tension; (d) comparison between the experimental data and the values calculated by Christopher *et al.*^[62] model

图 4-11d 显示了气泡生成尺寸的实验数据与 Christopher^[62]模型计算值的对比，相对误差在 28%以内，该模型能较好地预测过渡区内的气泡尺寸。表 4-2 列出了含表面活性剂 0.5 wt%的实验数据与 Christopher^[62]模型计算值的对比。首先验证 Christopher^[62]模型

中的式 1-24，然后验证式 1-26。前者的检验直接比较 b/w_c 的实验值与计算值；后者的检验直接比较生成气泡的长度。两种验证中，均直接从实验图片中提取 b 值。从表中可以看出， b/w_c 与 L/w_c 的计算值均比实验值要大。Christopher^[62]模型计算值大的原因可能来自对气泡头的定义中，其长度 b 为锥形头部的长度，而最终的气泡因为表面张力的作用，前后头部都为近似半椭球形，长度较刚夹断脱离时候要短。

表 4-2 实验值与 Christopher^[62]模型计算值的对比

Table 4-2 Comparison between the experimental data and values calculated by Christopher *et al.*^[62] model

流体	ϕ	Ca	$(b/w_c)_{exp}$	$(b/w_c)_{cal}$	$(L/w_c)_{exp}$	$(L/w_c)_{cal}$
0.5 wt% SDS	1.92	0.0058	0.72	0.83	2.38	3.15
0.5 wt% SDS	1.22	0.0077	0.68	0.82	1.90	2.32
0.5 wt% SDS	0.76	0.0097	0.64	0.80	1.62	1.76
0.5 wt% SDS	0.31	0.0145	0.58	0.78	1.20	1.18

4.1.1.5 “两步法”模型分析实验数据

Steggmans 等^[60]提出了“两步法”模型来预测 T 型微通道内生成液滴的尺寸（详见 1.2.1.1，式 1-17），认为液滴在 T 型接触口的生成过程由两步组成，液滴的生成体积与生成液滴的形状、两相在 T 型口的接触方式、微通道材料等没有直接关系。本文也用“两步法”分析了气泡生成的实验数据，如图 4-12 示。其中剪切速率的定义^[60]为 $\dot{\gamma} = 3u_c/w_c$ 。为了与 Steggmans 等^[60]的模型进行对比，本文对生成弹状气泡的体积以及气体的体积流量也作了如文献中类似的处理，见式 1-18。

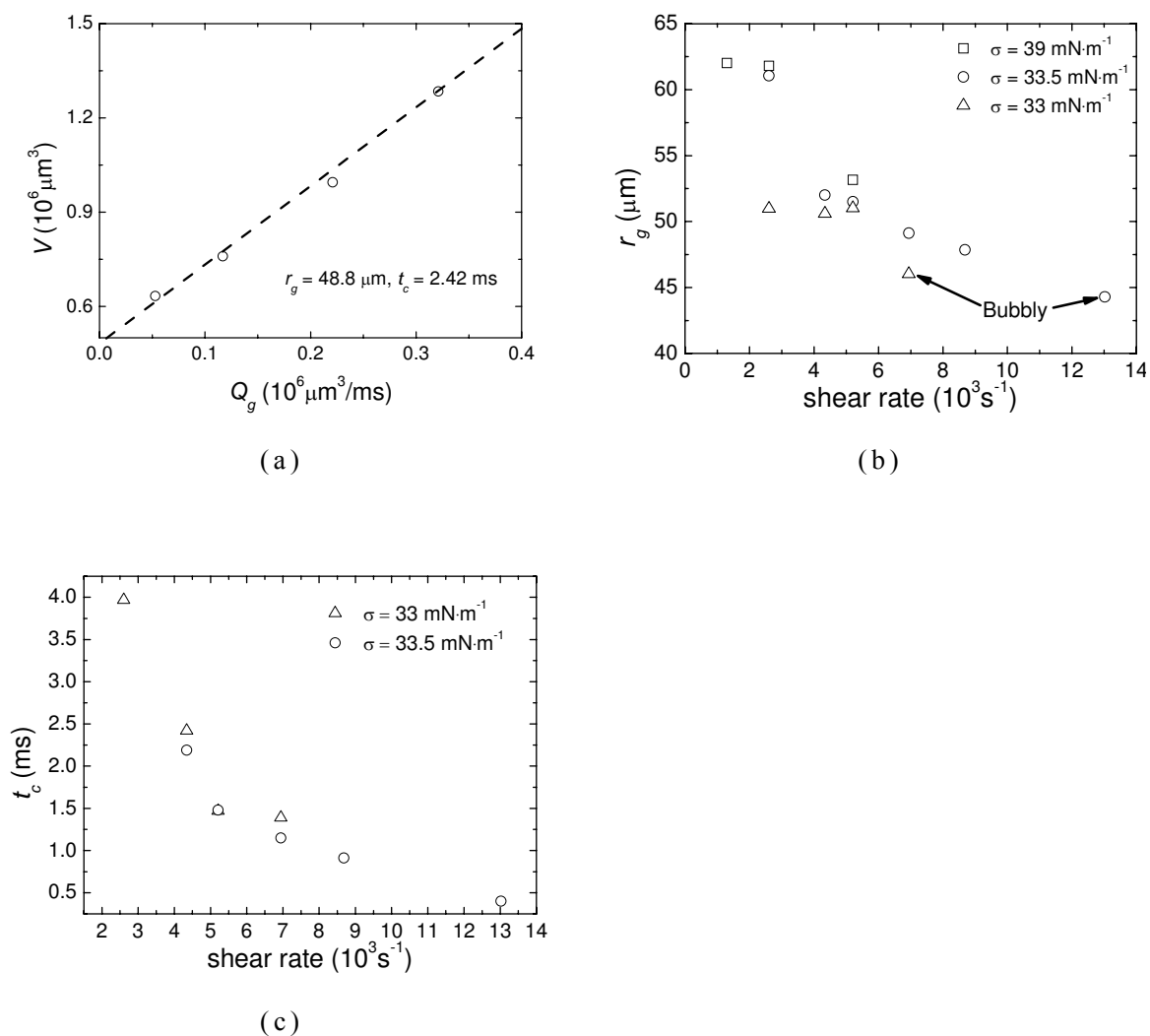
图 4-12 “两步法”模型^[60]对实验数据的分析

Fig. 4-12 (a) Bubble volume V as function of gas flow rate Q_g , $\mu = 0.92 \text{ mPa}\cdot\text{s}$, $\sigma = 33 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$, $Q_l = 50 \mu\text{L}/\text{min}$, $Ca = 0.0048$; the dashed line is the fit obtained with the two-step model^[60]: $V = V_g + Q_g t_c$, and the parameter values $r_g = 48.8 \mu\text{m}$, $t_c = 2.42 \text{ ms}$; the intercepts of the line is equal to V_g and the slope equals to t_c ; (b) Equivalent radius r_g of the bubble at the end of the growth stage as a function of shear rate of the liquid phase, $\mu = 0.92 \text{ mPa}\cdot\text{s}$; (c) Collapse time t_c as a function of shear rate of the liquid phase, $\mu = 0.92 \text{ mPa}\cdot\text{s}$

图 4-12a 是“两步法”模型^[60]用于实验数据的一个例子，从图中

可以看出, 两步法模型中的体积与气体流量的关系 $V = V_g + Q_g t_c$ 与实验值吻合良好, 而且根据图中的斜率和截距可以求出夹断时间 t_c 和膨胀阶段的最终气泡体积的当量半径 r_g 。图中的条件 $\mu = 0.92 \text{ mPa}\cdot\text{s}$, $\sigma = 33 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$, $Q_l = 50 \text{ }\mu\text{L}/\text{min}$, $Ca = 0.0048$ 下, 求得的 $r_g = 48.8 \text{ }\mu\text{m}$, $t_c = 2.42 \text{ ms}$ 。本文用此方法对不同区域生成的气泡进行了分析, 并采用得到的夹断时间和膨胀阶段气泡的当量半径对操作条件进行了分析。

图 4-12b 显示了膨胀阶段气泡的当量半径 r_g 与连续相的剪切速率 $\dot{\gamma}$ 以及表面张力的关系。当 $\dot{\gamma} < 3000 \text{ s}^{-1}$ 时, 膨胀阶段气泡的当量半径 r_g 几乎不受剪切速率的影响, Steegmans 等^[60]统计分析也发现在 $500 < \dot{\gamma} < 3500 \text{ s}^{-1}$ 单位内, r_g 不受剪切速率的影响; 当 $\dot{\gamma} > 3000 \text{ s}^{-1}$ 时, 随着剪切速率的增大而减小, 这与 van de Graaf 等^[64]模拟的结果一致。

当剪切速率大到一定值后, 会出现泡状流。从图 4-12b 可以看出, 对于相同的物系, 泡状流气泡膨胀阶段的当量半径 r_g 比弹状流的小, 这与 Steegmans 等^[60]统计分析得到的结果一致。如果气泡在膨胀阶段的最终体积 V_g 可以用静力学受力分析的方法得到, 那么泡状流和弹状流气泡的膨胀阶段的当量半径 r_g 的不同可能来源于膨胀阶段使气泡头平衡的各项力的差距。阻止气泡脱离的力是表面张力, 而促使气泡脱离的力为粘性力和由于气泡对液体的阻碍而产生的挤压力。

从图 4-12b 可以看出膨胀阶段气泡的当量半径 r_g 随着表面张力的增大而略有增大。这个实验结果与 Steegmans 等^[60]统计分析得到的结果一致。表面张力与气液表面张力值成正比。表面张力值越大, 气液界面之间的表面张力越大, 气泡脱离越困难, 而由于气体的持续不断的提供, 使膨胀阶段的最终当量半径 r_g 变大。

图 4-12c 显示了气泡的夹断时间 t_c 与剪切速率和表面张力的关系。夹断 t_c 随着剪切速率的增大而显著减小。这与 Steegmans 等^[60]统计分析得到的结果一致。这可能是因为随着剪切速率的增大, 气泡颈部减小得越快, 所以夹断时间越小。这也说明在其他条件相同的条件下, 剪切速率越快, 气泡生长过程的夹断时间越短, 而膨胀阶段的最终体积也变小, 所以, 气泡最终脱离体积也变小。这与前面的实验结果也是一致的, 即生成气泡的尺寸随着连续相流体的流量的增大而减小。

从图 4-12c 还可以看出气泡的夹断时间 t_c 随表面张力增大而略有减小。这个可以用气液界面的拉普拉斯力来解释^[70]。气泡头顶部气液界面的压力可以表示为 $(\Delta P)_t = \sigma(2/h + 2/w_c)$ ；气泡头颈部的气液界面压力可以表示为 $(\Delta P)_n = \sigma(1/r_n + 2/h)$ ，其中 r_n 为颈部的曲率半径。气泡头尾部和前端的压力差为 $\Delta P = (\Delta p)_n - (\Delta P)_t = \sigma(1/r_n - 2/w_c)$ 。表面张力越大，气泡头尾部与前端的压力差也越大，夹断速率越快，所以夹断时间也越小。这样夹断阶段对最终气泡体积的贡献变小，而膨胀阶段最终体积随着表面张力的增大而增大，两者共同作用使气泡最终的尺寸随表面张力变化不大，这也反过来解释了本实验以及其他研究者^[19]得到的生成气泡或者液滴的尺寸随表面张力变化不大这一结论。而 Steegmans 等^[60]统计分析发现夹断时间随着表面张力的增大先增大，而后不变，他们把这个现象归结于表面张力越大，阻止气泡脱离的力也越大，气泡脱离越困难，所以夹断时间也变大。如果考虑表面张力值对压力差以及表面张力的作用，不同的影响程度产生了不同的实验结果。

“两步法”模型分析结果表明气泡生成过程可以分为膨胀阶段和夹断阶段，最后生成气泡的尺寸由膨胀阶段的最终体积和夹断时间共同决定。通过控制实验条件如气液流量、连续相流体性质等能控制气泡生成尺寸。

4.1.2 气泡在非牛顿流体中的生成

4.1.2.1 流型

图 4-13 显示了氮气—0.1 wt%PAAm 溶液在 T 型微通道内产生的流型。各流量范围为： $80 < Q_g < 5000 \mu\text{L}/\text{min}$ ， $0.1 < Q_l < 100 \mu\text{L}/\text{min}$ 。当气体流量比较小的时候，即 $80 < Q_g < 400 \mu\text{L}/\text{min}$ 范围内，生成弹状流，这个区域称为弹状流区；随后， $400 < Q_g < 2000 \mu\text{L}/\text{min}$ 时，产生的气泡不均匀，其长度被拉得很长，在生成初期，其宽度要小于管道宽度，而紧挨着与引入气体管道同侧的壁面，这个区域称为过渡流区；当气体流量继续增大，即 $2000 < Q_g < 5000 \mu\text{L}/\text{min}$ 时，气体头被拉得很长，其长度已经大于观测区域，这个区域称为层流区或者喷射区。本实验主要考察了弹状流区内弹状气泡的生成过程及机

理。

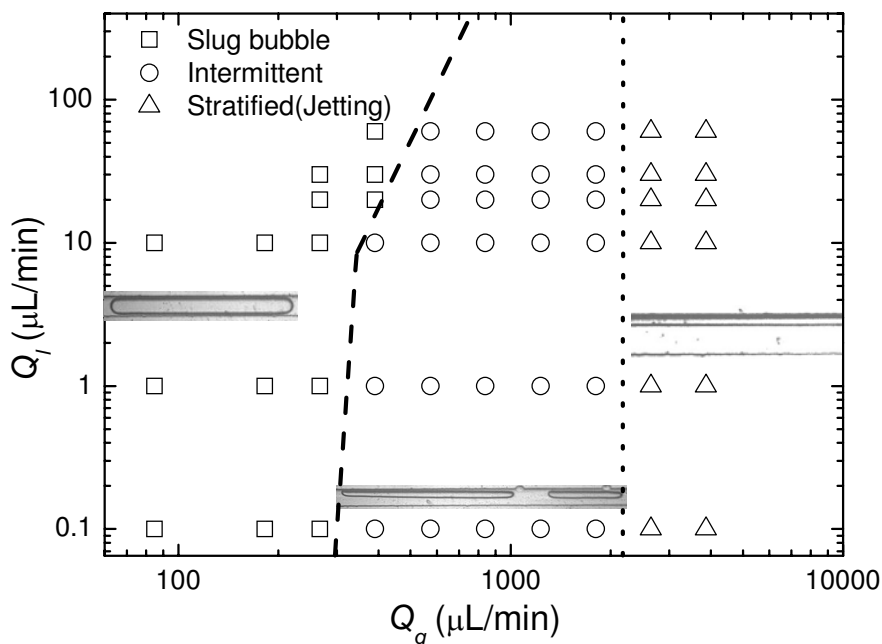


图 4-13 氮气—0.1 wt%PAAm 溶液在 T 型微通道产生的流型

Fig. 4-13 Flow pattern of N_2 -0.1 wt%PAAm solution at the T-junction

4.1.2.2 气泡生成过程及机理

图 4-14 显示了氮气气泡在 0.5 wt%PAAm 溶液中的生成过程图。气泡生成周期可以分为以下几个过程：首先，气液流体在 T 型接触处形成界面，由于气体瓶的持续供给，气体头开始往主通道内渗入直到形成颈部。此过程形成的气体头很尖，这个过程称为膨胀阶段，经过的时间为膨胀时间 t_e ；接着，气体头经历夹断阶段，主通道内的液体开始使气体头变形，并驱使气体头向下游方向发展，此时气体头并不填满整个主通道，而只占一部分，并且紧挨着引入气体管一侧的管壁，气液界面在流体方向并不是水平的，而是下游方向界面位置高于上游方向的位置，此时的气体头颈部在液体的驱动下逐渐向下游发展，颈部与引入气体管道和主通道下游方向管道形成的角的最短距离 W_m 逐渐缩短，并最终脱离，形成一个气泡，最后脱离部分称为脱离阶段。夹断阶段和脱离阶段经历的时间分别称为夹断时间 t_c 和脱离时间 t_p 。

实验发现气泡在非牛顿流体中生成过程与其在牛顿流体中生成过程的不同为：（1）气泡在非牛顿流体中生成的气体头顶部为尖状；而在牛顿流体中为抛物状；（2）在非牛顿流体中，气体头只紧挨着与气体引入管同侧的壁面，而且气体头并不呈对称结构；而在牛顿流体中，气体头紧挨着主通道的上下壁面，而且以管道中心线为轴呈对称结构；（3）在非牛顿流体中，气体头部的宽度远小于主通道管的宽度；而在牛顿流体中，气体头部的宽度非常接近于管道的宽度；（4）非牛顿流体中，气体头部在流体方向不是一样宽，气体头的下流方向要比上流方向宽，而在牛顿流体中，气体头部在流体方向一样宽；（5）在非牛顿流体中，刚形成的气泡的尾部要比头部窄，而且整个宽度要比管道窄；而在牛顿流体中，气泡在上下游方向的宽度一样。

图 4-15a-b 显示了气泡头顶部离 T 型接触口的距离 L_t 以及其颈部离引入气体管和主通道下游方向构成的角的最短距离 W_m 的演变过程。

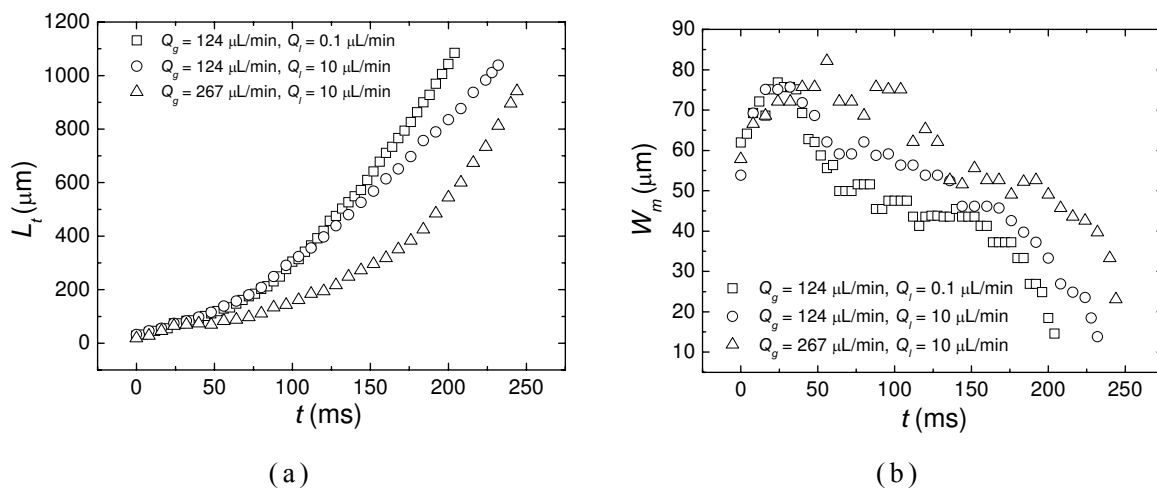


图 4-15 气体头在非牛顿流体中的演变过程

Fig. 4-15 (a) Temporal evolution of the thread tip L_t ; (b) temporal evolution of the neck W_m . Gas phase: N₂; liquid phase: 0.5 wt% PAAm aqueous solution

图 4-15a 表明气泡头顶部的演变过程与其在牛顿流体中的演变过程相似：在膨胀阶段，气泡头的发展主要由气体控制；在夹断阶

段，气泡头的发展由两相共同控制；气泡头在第一阶段的速度要小于第二阶段的速度。

从图 4-15b 可以看出气泡头在第一阶段迅速发展至最大值，该过程持续时间很短；然后气体头颈部以一相对恒定的速度缩短至 $40\ \mu\text{m}$ 处，接着以较大的速度迅速夹断。夹断时间相对较长，而脱离时间也相对较小。举例来说，当 $Q_g = 267\ \mu\text{L}/\text{min}$ ， $Q_l = 10\ \mu\text{L}/\text{min}$ 的时候，膨胀时间 $t_e = 50\ \text{ms}$ ，夹断时间 $t_c = 180\ \text{ms}$ ，脱离时间 $t_p = 20\ \text{ms}$ 。气泡的生成过程由夹断阶段控制，但是膨胀阶段和脱离阶段也对其有一定的影响。

与气体头在牛顿流体中夹断过程不同的是，该过程中的夹断速度有一定的波动，流体速度越大，波动也越大。这与连续相流体的性质有关。PAAm 溶液具有剪切变稀的特性，其粘度随剪切力变大而变小，气泡头颈部的变小，液体在其周围的剪切速率变大，流体的粘度变小，所以流体对气泡头的剪切力变小，在一定程度上影响了气泡的夹断速率，使之产生波动。

关于脱离阶段的缩短速率突然变大，而且呈非线性发展。Dollet 等^[56]研究发现气泡在方形截面微通道内的夹断是三维、非稳定的缩短过程，颈部宽度与剩余时间关系为 $W_m \propto (T-t)^{1/3}$ ，其中 T 为生成周期。本实验发现，颈部宽度小于 $40\ \mu\text{m}$ 以后，开始出现非线性的发展过程，这个宽度正好等于微通道的深度，由于表面张力的作用，可以认为颈部截面由椭圆形向圆形发展，所以脱离阶段的颈部发展过程也可以认为是三维的，液体包围在气体头周围，所以是非稳定的缩短过程。图 4-16 显示了本实验得到的气泡头颈部与剩余时间的关系为 $W_m \propto (T-t)^{0.21 \pm 0.01}$ ，说明气泡在非牛顿流体中脱离阶段也是三维非稳定的过程，惯性力对气泡头脱离过程也有影响^[56]。本实验指数较文献^[56]中指数小的原因可能为：（1）微通道的不同：本文实验为 T 型接触口，而文献^[56]中为聚焦流十字型，惯性力对气泡脱离的影响更大，所以气泡颈部缩短得越快，指数越大；（2）溶液的剪切变稀特性，剪切力变大，PAAm 溶液的粘度变小，减慢了脱离速度，所以气泡颈部缩短速率变慢，指数变小。

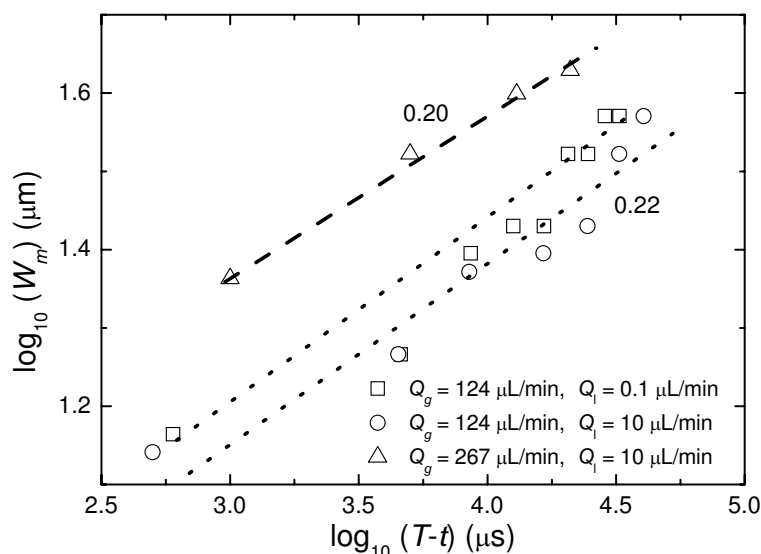


图 4-16 气泡头颈部 W_m 与剩余时间 $(T-t)$ 的对数关系图

Fig. 4-16 Logarithm of the minimum width of the gas thread W_m as a function of the logarithm of the time $(T-t)$ until final breakup. Gas phase: N₂; liquid phase: 0.5 wt% PAAm aqueous solution

4.1.2.3 气泡生成尺寸

图 4-17 显示了气泡生成尺寸与气液流量比以及溶液浓度的关系。本文对气泡的生成体积以及气体的体积流量也作了如文献^[60]中类似的处理，见式 1-18。气泡生成尺寸 r_{3D}/w_c 随着气液流量比 ϕ 的增大而呈非线性增大；随着 PAAm 溶液浓度的增大而减小。牛顿流体中生成气泡的尺寸与气液流量比呈正比的关系，这是因为挤压力的原因。非牛顿流体中的弹状气泡一般都在流体方向被拉得比较长，其宽度也小于管道的宽度。液体流速增大，剪切速率变大，溶液的粘度变小，粘性应力变小，减慢了气泡夹断以及脱离的速度，这样最后气泡生成尺寸与气液流量比的关系就是指数小于 1 的指数关系。溶液浓度越大，在相同剪切力情况下，粘度也越大，粘性应力越大，气泡夹断和脱离越快，所以生成的气泡也越小。

上一节对生成过程的研究知道惯性力对气泡生成也有影响；结合气泡在牛顿流体中的生成原理知道剪切力在此过程也不容忽视；再加上 PAAm 溶液本身的剪切变稀特性，使气泡在非牛顿流体

PAAm 溶液中的生成变得更加复杂。本实验中毛细管数、雷诺数、韦伯数范围为： $0.0006 < Ca < 0.01$ ， $0.07 < Re < 105$ ， $0.00004 < We < 1$ 。粘性应力、流体的惯性力和表面张力共同对气泡的生成过程起作用。

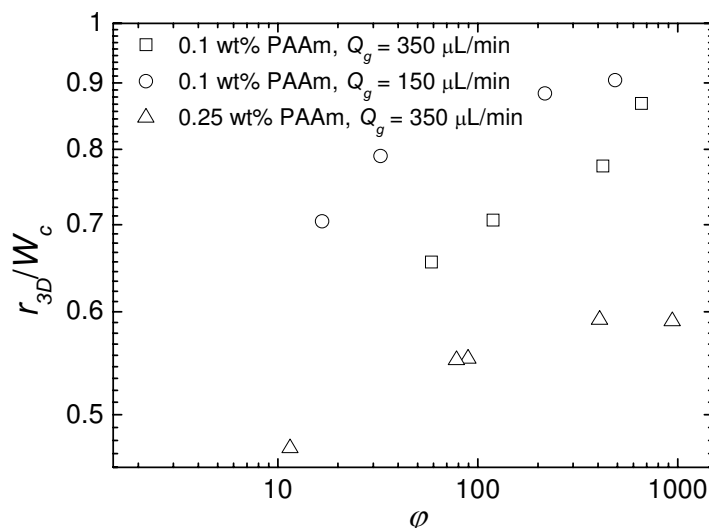


图 4-17 PAAm 溶液中生成气泡的尺寸与气液流量比以及溶液浓度的关系

Fig. 4-17 Effects of concentration of PAAm solutions and the ratio of gas/liquid flow rates on bubble size

4.1.3 结论

本节研究了气泡在错流 T 型接触处的生成，连续流体用牛顿流体和非牛顿流体。

牛顿流体

研究了错流接触的 T 型微通道内气泡在牛顿流体中生成过程的挤压—滴状（squeezing-to-dripping）机理。结果表明气泡的生成区域可以分为：挤压区，滴状区和转变区。

挤压区内生成弹状气泡，由于气泡对流体流体的阻塞使流体内部产生的积压是气泡生成的控制因素。在该区域，气泡的尺寸可以用气液流量比进行关联。

滴状区内生成分散的小气泡。在该区域，气泡的生成过程中由剪切力和表面张力控制。生成的气泡尺寸可以用液体的毛细管数进行关联。除非气泡尺寸小到对流体不产生影响，否则挤压力还是存

在的，而且对气泡的生成过程也产生一定的影响。

转变区域内生成较短的弹状气泡。挤压力、剪切力以及表面张力共同控制气泡的生成过程。在该区域，气泡的尺寸可以用毛细管数和气液流量比进行关联。

运用“两步法”模型分析了气泡的生成过程，结果表明，气泡的生成过程可以统一划分为两个步骤（不论是长的弹状气泡、短的弹状气泡还是分散的小气泡）：膨胀阶段和夹断脱离阶段。生成的气泡的体积由两部分组成：膨胀体积和夹断脱离阶段积累的体积。最后生成的气泡体积由膨胀阶段的终体积和夹断脱离阶段的夹断时间共同控制。实验考察了不同的操作条件对膨胀阶段的终体积和夹断脱离阶段的夹断时间的影响。

非牛顿流体

非牛顿流体 PAAm 的剪切变稀特性影响气泡头的形状、气泡生成过程以及生成气泡的体积。气泡在非牛顿流体中的流型可以分为：弹状气泡区、间歇区、分层（喷射）区。研究表明流体的流变性质对气泡生成过程影响很大：气泡在非牛顿流体中形成的气体头顶部为尖状，气体头只紧挨着与气体引入管同侧的壁面，而且气体头并不呈对称结构，气体头部的宽度远小于主通道管的宽度，气体头部在流体方向不是一样宽，气体头的下流方向要比上流方向宽，在非牛顿流体中，刚形成的气泡的尾部要比头部窄，而且整个宽度要比管道窄。

气泡在非牛顿流体中的夹断阶段也呈线性发展，由于非牛顿流体的剪切变稀特性，该过程伴随波动。气泡头颈部的最小宽度与最终脱离的剩余时间呈指数关系，而且指数为 0.21。结果表明惯性力影响气泡的生成过程。

气泡生成尺寸随着气液流量比的增大而呈非线性增大；随着 PAAm 溶液浓度的增大而减小。结果表明气泡的生成过程受剪切力、挤压力和表面张力共同作用。

该研究为进一步的实验、模拟和理论研究打下了基础，为微通道的设计提供了一定的理论指导，并对微流体进一步的开发应用具有一定的参考价值。

4.2 矩形微通道内单相流的 micro-PIV 测量

微粒子成像测速仪 (micro-PIV) 是基于 PIV 和显微技术发展而来的一种对微流体的全场测定技术。本节用 micro-PIV 测量了矩形微通道内牛顿流体和非牛顿流体的流场。微通道由 PMMA 材料制成, 其截面为 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 、 $400 \times 400 \mu\text{m}$ 。不同浓度的甘油水溶液用作牛顿流体; 不同浓度的 PAAm 溶液用作非牛顿流体。结果显示, micro-PIV 测量技术能精确地测量微流体的速度场, 微通道内单相流速度场的实验值与传统理论的计算值吻合良好。微通道的长度为 L , 深度为 h , R 为深度的一半, 单向流经过微通道的平均速度为 \bar{u} , 假设流体在墙壁面没有滑移。

4.2.1 牛顿流体单相流的 micro-PIV 测量

假设流体在连续流区, 边界没有滑移, 流体为稳定、不可压缩的层流。流体的连续方程和 Navier-Stokes 方程导出 Poisson 方程^[131]:

$$(\partial_x^2 + \partial_y^2)v(x, y) = \frac{\Delta p}{\mu L} \quad (4-7)$$

方形截面通道内的速度场为:

$$v(x, y) = \frac{\Delta P}{2\mu L} \left[R^2 - y^2 + \frac{32R^2}{\pi^3} \times \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^{n+1} \cosh[(2n+1)\pi x/2R] \cos[(2n+1)\pi y/2R]}{(2n+1)^3 \cosh[(2n+1)\pi/2]} \right] \quad (4-8)$$

$$\overline{v(x, y)} = \frac{2R^2 \Delta P}{\mu L} \left[\frac{1}{12} - \frac{16}{\pi^5} \times \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^{n+1} \tanh[(2n+1)\pi/2]}{(2n+1)^5} \right] = \frac{Q}{4R^2} \quad (4-9)$$

将上面方程化简可以得到:

$$[v(y)]_{x=0} = 1.21\bar{v} \left\{ 1 - \left[(2y - y_{\max} - y_{\min})/2R \right]^2 \right\} \quad (4-10)$$

图 4-18 显示了长度为 0.2 mm, 宽度为 0.6 mm 的通道内 50% 甘油-水溶液中速度场的 micro-PIV 测量值。本文测量速度值的平面为水平微通道的中心平面。从图可以看出, 矩形截面中心面的微流体速度场还是几乎呈抛物线分布, 这与传统理论一致。为了与传统理

论有更清晰的比较，本文将测量长度范围内同方向同 Y 值的速度求和取平均，表示不同 Y 值上的速度值，比较结果如图 4-19。图中理论值显示的曲线为式 4-10 计算的结果。结果显示微流体在百微米级的矩形截面通道内的速度场仍然可以用传统理论来计算。

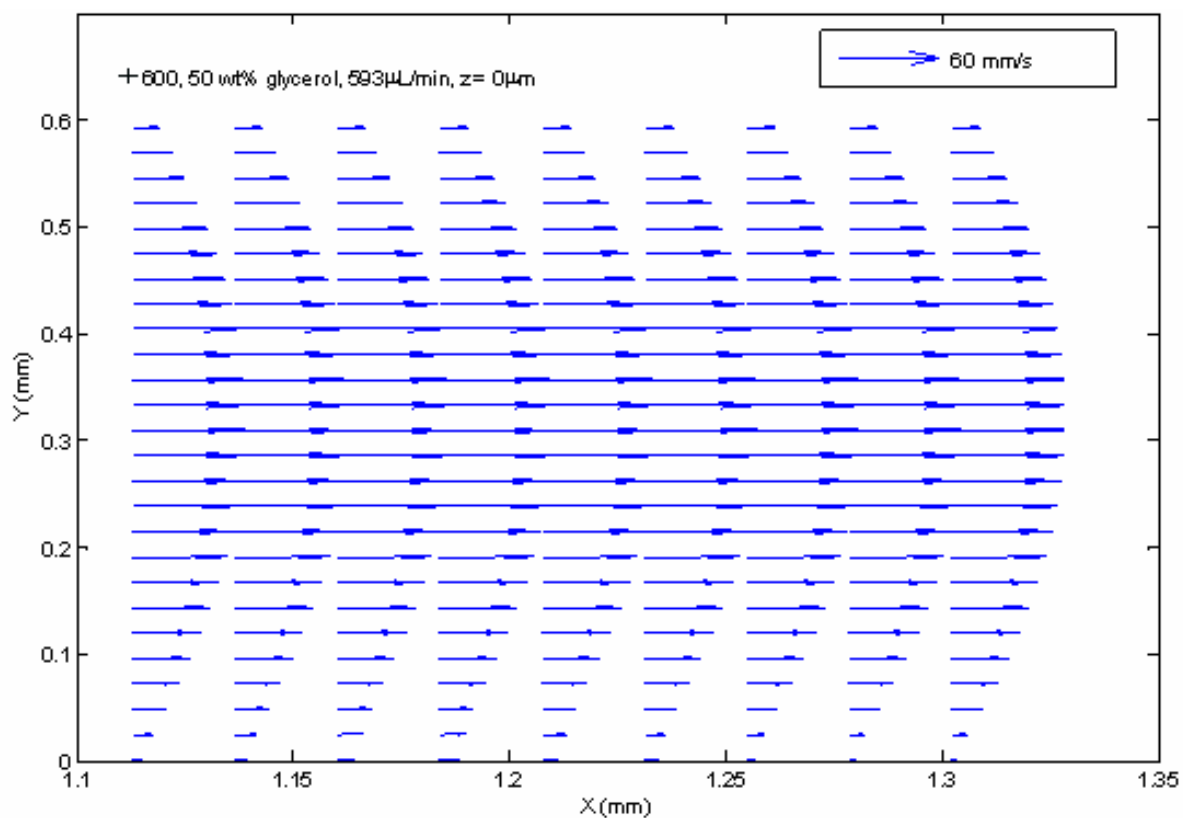


图 4-18 速度场测量值举例

Fig. 4-18 Velocity distribution in the mid-plane of the $600\ \mu\text{m} \times 600\ \mu\text{m}$ microchannel for 50 wt% glycerol aqueous solution at $Q_l = 593\ \mu\text{L}/\text{min}$

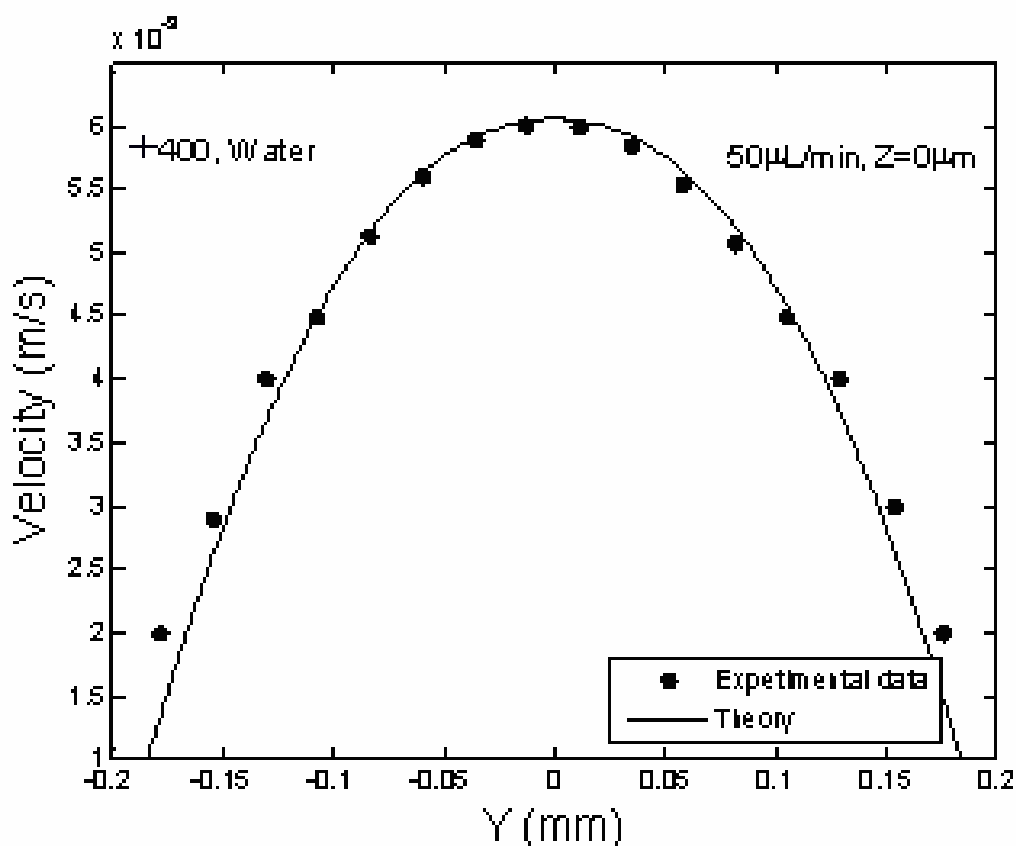


图 4-19 速度场的测量值与计算值的对比

Fig. 4-19 Measured and predicted velocity profile $u(y)$ for fully developed flow

图 4-20 分别显示了操作条件对速度场的影响。对于特定流体来说，速度场的纵向分布与体积流量成正比（图 4-20a）；在同一体积流量和通道尺寸条件下，速度场的纵向分布与液体粘度无关（图 4-20b）；对不同聚焦层的速度场的分布来说，相同横坐标下的速度场分布是不一样的（图 4-20c），通过测量不同层的速度场分布，也可以创建微通道内流体的三维速度场分布；对不同的微通道尺寸流体来说，纵轴分布的最大值随着管道尺寸的增大而减小，抛物线的张角随着管道的增大而增大（图 4-20d）。

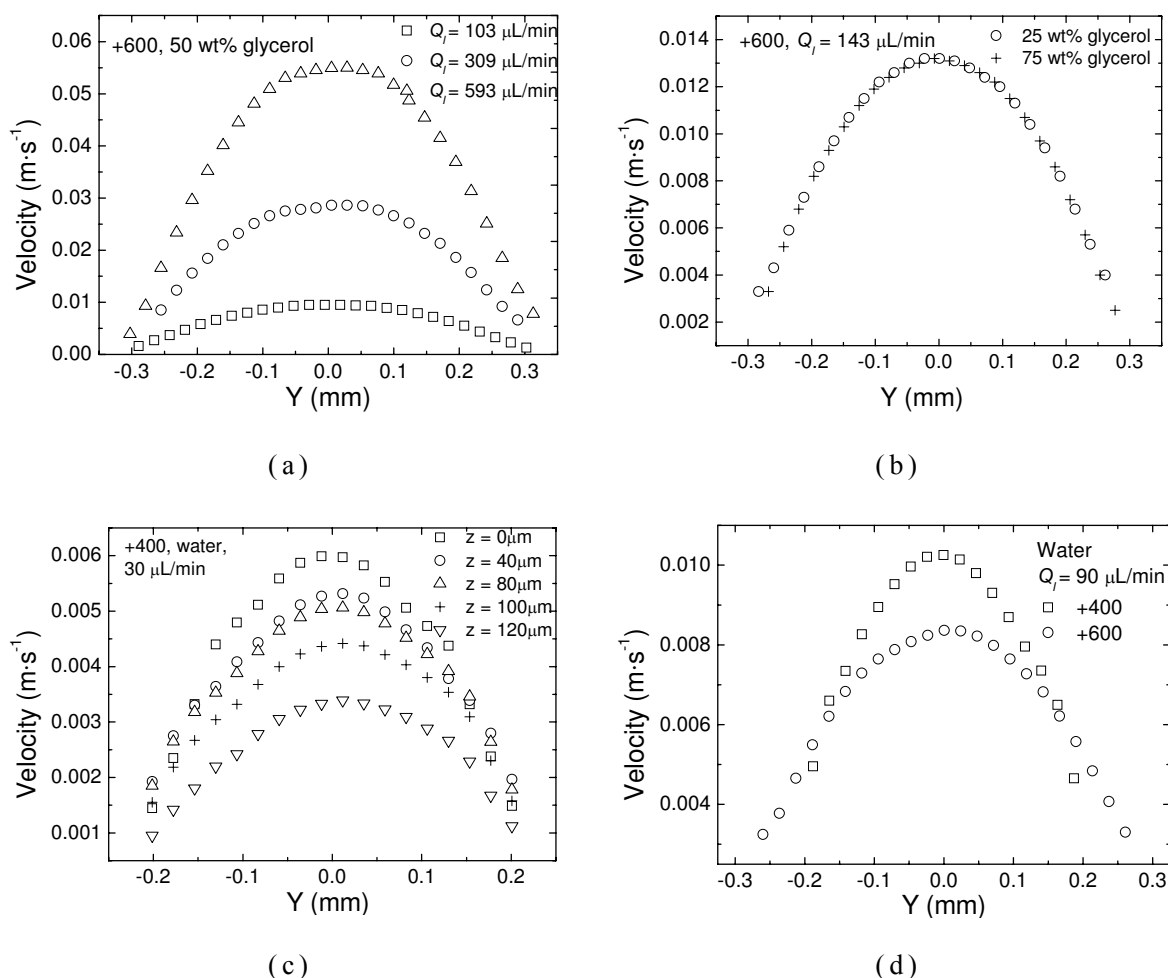


图 4-20 速度场的影响因素

Fig. 4-20 Effects on the velocity distribution $u(y)$: (a) volumetric flow rates; (b) viscosity; (c) different depth; (d) different size

4.2.2 非牛顿流体单相流的 micro-PIV 测量

对于可以用幂数关系表示粘度和剪切力的非牛顿流体来说，在充分发展、不可压缩、边界无滑移的条件下，其速度分布可以表示为^[132]：

$$u(y) = -\frac{\bar{u}}{h} \cdot \left(4 - \frac{2}{n+1}\right) \cdot \left(\frac{2}{h}\right)^{\frac{1}{n}} \left(|y|^{\frac{n+1}{n}} - \left(\frac{h}{2}\right)^{\frac{n+1}{n}} \right) \quad (4-11)$$

$$u(y)_{\max} = \frac{\bar{u}}{h} \cdot \left(4 - \frac{2}{n+1}\right) \cdot \left(\frac{2}{h}\right)^{\frac{1}{n}} \cdot \left(\frac{h}{2}\right)^{\frac{n+1}{n}} \quad (4-12)$$

$$R = \frac{h}{2} \quad (4-13)$$

$$\frac{u(y)}{u(y)_{\max}} = 1 - \left(\frac{|y|}{R} \right)^{\frac{n+1}{n}} \quad (4-14)$$

本节中出现的 u 都是 y 轴方向的速度，所以本节后面用 u 代替 $u(y)$ 。

图 4-21 显示了 0.5 wt% PAAm 溶液在 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 微通道内充分发展段的速度场分布的测量结果。速度场分布在管道的中间位置比较平。

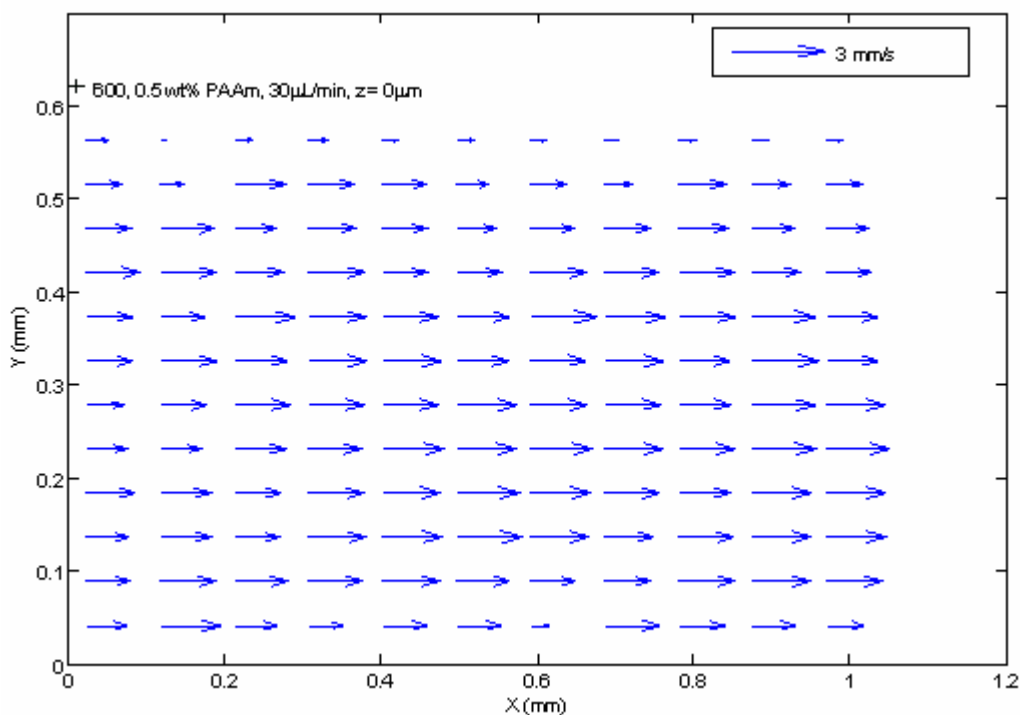


图 4-21 0.5 wt% PAAm 溶液在 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 微通道内的速度场分布

Fig. 4-21 Velocity distributions in the mid-plane of the $600 \times 600 \mu\text{m}$ microchannel for 0.5 wt% PAAm solution

0.5 wt% PAAm 溶液在 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 微通道内充分发展段的竖直方向中层的速度场测量结果与理论值的比较见图 4-22，图中点为实验值，线为计算值。从图可以看出，百微米级微通道内充分发展的非牛顿流体的速度场分布可以用传统理论来计算。

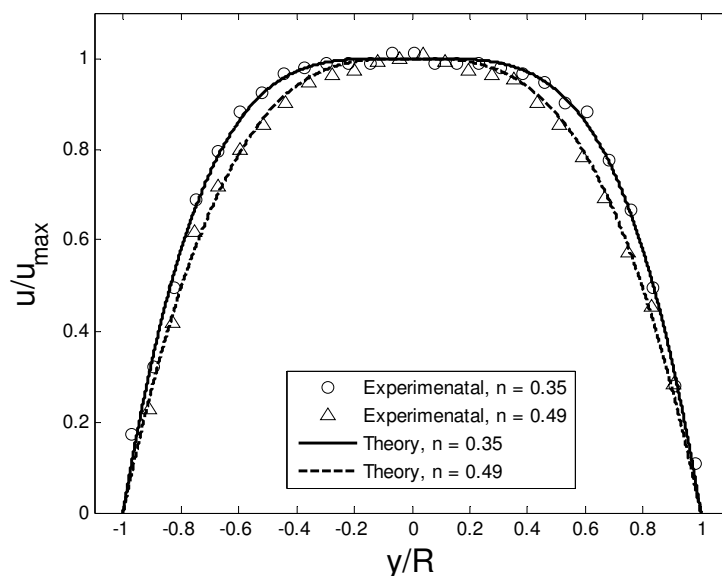


图 4-22 实验测量与理论计算的速度场的对比

Fig. 4-22 Measured and predicted velocity profile $u(y)$ for fully developed PAAm solutions in the mid-plane of the $600 \times 600 \mu\text{m}$ microchannel

图 4-22 还显示了流体指数 n 对速度场的影响。根据式 4-14，无量纲速度分布 u/u_{\max} 随着 n 的减小（即 PAAm 浓度的增大）而增大，图中很清楚的显示了这一关系。

图 4-23 显示了流体的体积流量和管道的尺寸对速度场分布的影响。由式 4-11，对于一定的微通道而言，中间层的速度场分布随着流体体积流量的增大而增大；最大值随着管道尺寸的增大而减小，速度场分布随着管道尺寸的增大而变平坦。实验值与理论分析趋势一致。

尽管径向的速度场分布随着流体体积流量和管道尺寸的变化而变化（图 4-23），但是根据式 4-14，无量纲化的速度分布 u/u_{\max} 与无量纲化的距离 $|y|/R$ 只决定于流体的指数 n 。反过来说，流体的指数 n 可以通过测量的速度场分布来计算：通过 $\log(1-u/u_{\max})$ 与 $\log(|y|/R)$ 作图求斜率即可求得流体指数：

$$\log\left(1 - \frac{u}{u_{\max}}\right) = \left(1 + \frac{1}{n}\right) \log\left(\frac{|y|}{R}\right) \quad (4-15)$$

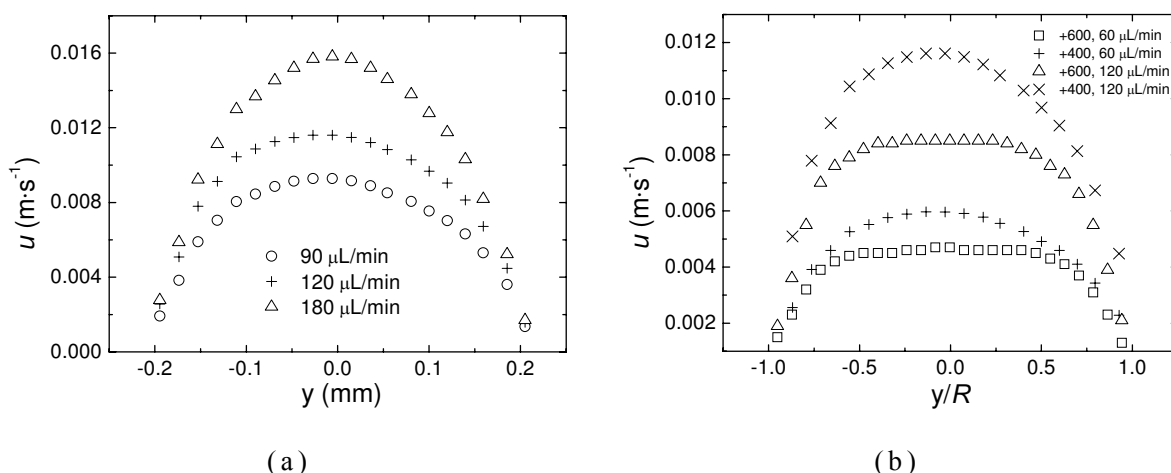


图 4-23 影响非牛顿流体速度场的因素

Fig. 4-23 Effects on the velocity profile $u(y)$: (a) volumetric flow rates, $400 \times 400 \mu\text{m}$ microchannel, $0.50 \text{ wt}\%$ PAAm; (b) size of microchannel, $0.50 \text{ wt}\%$ PAAm

图 4-24 显示了三种 PAAm 浓度在不同体积流量下 $(1-u/u_{\max})$ 与 $(|y|/R)$ 的对数图。对 $0.10 \text{ wt}\%$, $0.25 \text{ wt}\%$ 和 $0.50 \text{ wt}\%$ 的 PAAm 溶液来说, 计算得到的流体指数分别为 0.51 , 0.43 和 0.35 。通过传统流变仪测得的流体指数为 0.49 , 0.41 和 0.35 。结果表明该方法与传统流变仪的测量值基本吻合。所以通过测量得到的速度场也可以计算流体的指数, 这也提供了一种新方法测量流体指数。

通过测量得到的速度场, 还可以得到径向的剪切速率分布, 进而根据流体性质, 得到径向的粘度分布, 计算值见式 4-17, 理论值为式 4-18, 结果见图 4-25。计算得到的剪切力分布与理论计算结果在管道中间部分吻合良好。当 $|y/R| > 0.7$ 的时候, 开始出现偏差。在接近壁面, 剪切速率达到其最大值, 计算方法为:

$$\left. \dot{\gamma} \right|_{\max} \Big|_{y=R} = \frac{n+1}{n} \cdot \frac{u_{x\max}}{R} \quad (4-16)$$

该图中最大的剪切速率的计算值为 243 s^{-1} 。

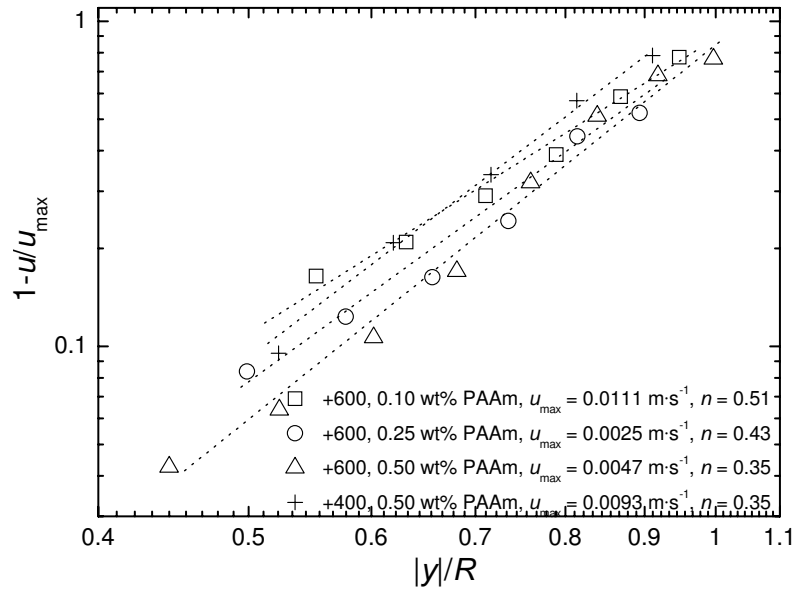


图 4-24 实验测量值对流体指数 n 的预测

Fig. 4-24 Measurement of the power law exponent n on the microchannels for different concentrations of PAAm solutions. Log-log plot of $(1-u/u_{\max})$ with $(|y|/R)$ is a straight line, the slope of which gives $(1+1/n)$, from which, the parameter n could be extracted

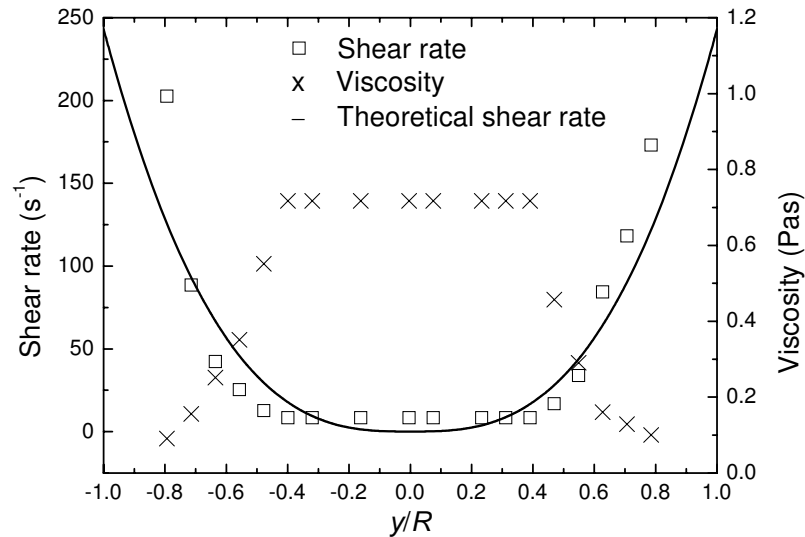


图 4-25 非牛顿流体在径向的剪切速率和粘度的分布

Fig. 4-25 Shear rate and viscosity distribution in the radial direction at a fixed axial line. Liquid: 0.5 wt% PAAm, $600 \times 600 \mu\text{m}$

所以，在接近管道壁面的位置，PAAm 溶液由于其剪切变稀特

性，其粘度值达到最小值。这里，通过速度场测量的径向的剪切力定义为：

$$\dot{\gamma} = \left| \frac{du_x}{dy} \right| \quad (4-17)$$

理论计算得到的剪切力为：

$$|\dot{\gamma}| = \left| \frac{du_x}{dy} \right| = \frac{u_{x\max}}{R} \cdot \frac{n+1}{n} \cdot \left(\frac{y}{R} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (4-18)$$

4.2.3 结论

用 micro-PIV 技术测量了 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 和 $400 \times 400 \mu\text{m}$ 微通道内充分发展的牛顿流体以及非牛顿流体的速度场分布。测量结果与理论计算值进行了对比，结果显示百微米级的微通道内速度场的分布可以通过传统理论进行计算。对于非牛顿流体，测量得到的速度场分布提供了一种计算剪切变稀流体指数 n 、剪切速率分布以及粘度分布的方法，为剪切变稀流体的流变性质的测量以及复杂微流体的流动特性提供了一种新的实验测量技术。

4.3 聚焦流十字型微通道内气泡的生成

这一节主要实验研究了第三类聚焦流十字型方形截面的微通道内气泡的生成。所用的实验仪器主要为高速摄像机和 micro-PIV。PMMA 材质的微通道截面尺寸为 600×600 和 $400 \times 400 \mu\text{m}$ 。氮气气泡在牛顿流体以及非牛顿流体中生成。牛顿流体为加入不同浓度的表面活性剂十二烷基硫酸钠 (SDS) (0-0.8 wt%) 和吐温 80 (0-2 wt%) 的甘油—水混合物 (0-62 wt%); 非牛顿流体为不同浓度 (0.1-1.25 wt%) 的黏弹性聚丙烯酰胺溶液 (polyacrylamide, PAAm)。不同的操作条件得到不同的气液两相流流型, 并以气液体积流量为横纵坐标绘制了流型图。考察了操作条件如气液体积流量、连续流体的性质、管道的尺寸等对气泡生成尺寸的影响。用高速摄像机观察并记录了气泡生成的过程并定量分析了气泡的演变过程。用 micro-PIV 实时测量和记录了气泡生成过程周围流场的变化情况, 能更深入的分析 and 理解气泡的生成机理。对于弹状气泡在牛顿流体中的生成过程, 实验考察了气液流量、液体粘度对夹断速度、夹断时间、脱离过程等的影响, 并用无量纲数气液流量比和雷诺数对无量纲速度和时间进行了关联。对于脱离过程, 气泡头颈部最小宽度与剩余时间的关系为 $W_m \propto (Q_g/Q_l)^{-0.15}(T-t)^{1/3}$ 。对于气泡在非牛顿流体中的生成, 高速摄像机实时记录了其变化过程, 并定量分析了气泡头的演变过程。

4.3.1 牛顿流体中气泡的生成

4.3.1.1 气泡生成的种类

图 4-26 显示了氮气在水溶液中生成的不同类型的气泡: 弹状气泡、孤立小气泡、卫星气泡。连续相为含 0.5 wt% SDS 和 62 wt% 甘油的水溶液。微通道的截面为 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 。各类型气泡的产生条件以及特征如下:

弹状气泡, 也称为泰勒气泡 (Taylor bubble), 发生在低液速条件下: 从 $800 \mu\text{L}/\text{min} < Q_g < 7000 \mu\text{L}/\text{min}$, $1000 \mu\text{L}/\text{min} < Q_l < 10.1 \cdot Q_g^{0.8} \mu\text{L}/\text{min}$ 到 $7000 \mu\text{L}/\text{min} < Q_g < 25000 \mu\text{L}/\text{min}$, $1000 \mu\text{L}/\text{min} < Q_l < 24484 \cdot Q_g^{-0.08} \mu\text{L}/\text{min}$ 。气泡的长度比微通道的宽度要大, 气泡接触微

通道的壁面，而且与壁面之间有一层薄膜。弹状气泡之间被液弹分隔开来。气泡两头呈现弹头状。液弹里面通常没有卫星气泡，这与传统大管道($> 1 \text{ mm}$)内的现象不同。气液在聚焦型接口接触，气体头部呈现半球状。随着液体流量的增加，气泡尾部的曲率半径也变大；气泡长度也大大减小。弹状气泡在工业应用中常常遇到。

当液体流量增大，从 $800 \mu\text{L}/\text{min} < Q_g < 7000 \mu\text{L}/\text{min}$, $1000 \mu\text{L}/\text{min} < Q_l < 10.1 \cdot Q_g^{0.8} \mu\text{L}/\text{min}$ 到 $7000 \mu\text{L}/\text{min} < Q_g < 25000 \mu\text{L}/\text{min}$, $1000 \mu\text{L}/\text{min} < Q_l < 24484 \cdot Q_g^{-0.08} \mu\text{L}/\text{min}$ 内时，会出现孤立小气泡。这些气泡通常小于或者等于微通道的宽度。在相对低液体流速情况下，气泡呈现鸡蛋形状（图 4-26e）。与弹状气泡一样，气泡前端的曲率半径通常小于尾端的曲率半径。尽管连续相流体速度比较大、气泡比较小，气泡上下流的速度也不一样，这现象与弹状流类似（见图 4-27）。在相对高液体流速情况下（图 4-26f），孤立气泡变为球形结构。两个连续气泡之间的距离比通道的宽度要大很多。在接触口，气体头部的形状由半球形变为圆锥形，这是由于轴向的高液体动量增加了气体头部的拉伸效应。

在非常高的液体流速下，会出现卫星气泡： $800 \mu\text{L}/\text{min} < Q_g < 7000 \mu\text{L}/\text{min}$, $113.2 \cdot Q_g^{0.54} \mu\text{L}/\text{min} < Q_l < 17000 \mu\text{L}/\text{min}$ 以及 $7000 \mu\text{L}/\text{min} < Q_g < 25000 \mu\text{L}/\text{min}$, $12710 \cdot Q_g^{0.01} \mu\text{L}/\text{min} < Q_l < 17000 \mu\text{L}/\text{min}$ 。前面的气泡（母气泡）后面紧跟着一个微小的卫星气泡。在 $Q_g = 1200 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 12000 \mu\text{L}/\text{min}$ 的条件下（图 4-26g-h），母气泡和卫星气泡的直径分别为 $218 \mu\text{m}$ 和 $34 \mu\text{m}$ 。有时候，一个母气泡紧跟着的卫星气泡不止一个。在气液接触口，气体头被拉得很长，延伸到主管道的下游方向比较远的位置（图 4-26g-h）。卫星气泡产生于气体头的多次分裂，这个现象与 Tjahjadi 等^[133]报道的毛细管内出现的卫星液滴相似，但是两者的表面张力和密度比也有区别，液液系统的表面张力为 $10 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ ，气液系统的表面张力在 $30\text{-}40 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ 之间；液液系统的密度比与气液系统的密度比存在很大区别。本实验的这种现象也扩展了 Tjahjadi 等^[133]提出的表面张力破裂原理的非稳定性应用领域。

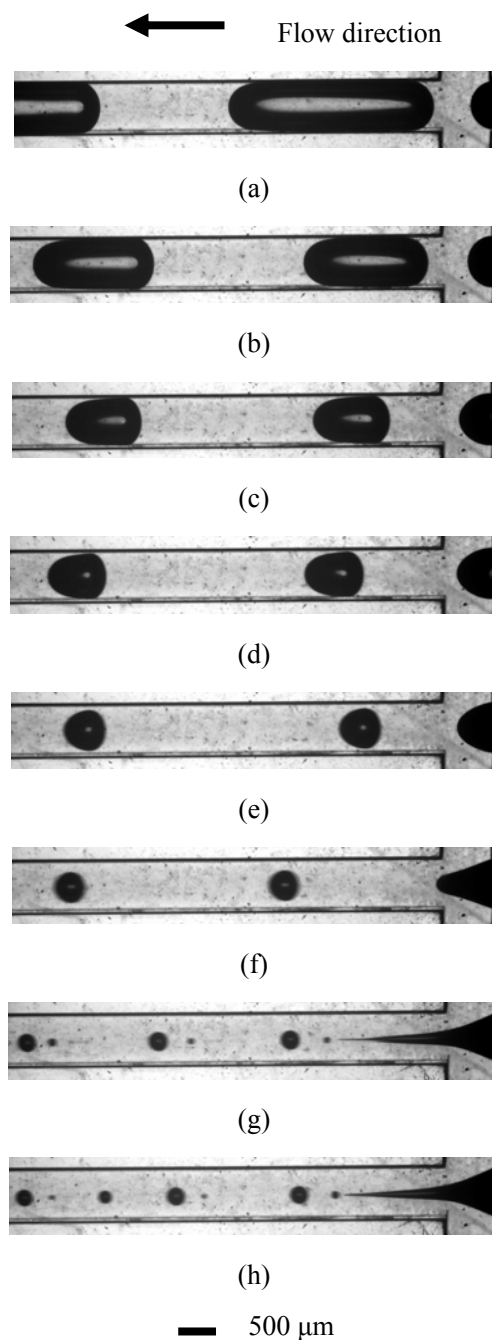


图 4-26 聚焦流十字型微通道内气泡类型

Fig. 4-26 Flow patterns at the cross-junction. Gas phase: N_2 , $Q_g=1200 \mu\text{L}/\text{min}$; liquid phase: 0.5 wt% SDS and 62 wt% glycerol -water mixture. (a) slug bubble, $Q_l=600 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) slug bubble, $Q_l=1200 \mu\text{L}/\text{min}$; (c) slug bubble, $Q_l=2400 \mu\text{L}/\text{min}$; (d) slug bubble, $Q_l=3600 \mu\text{L}/\text{min}$; (e) isolate bubble, $Q_l=6000 \mu\text{L}/\text{min}$; (f) isolate bubble, $Q_l=8400 \mu\text{L}/\text{min}$; (g) satellite bubble, $Q_l=12000 \mu\text{L}/\text{min}$; (h) satellite bubble, $Q_l=12000 \mu\text{L}/\text{min}$

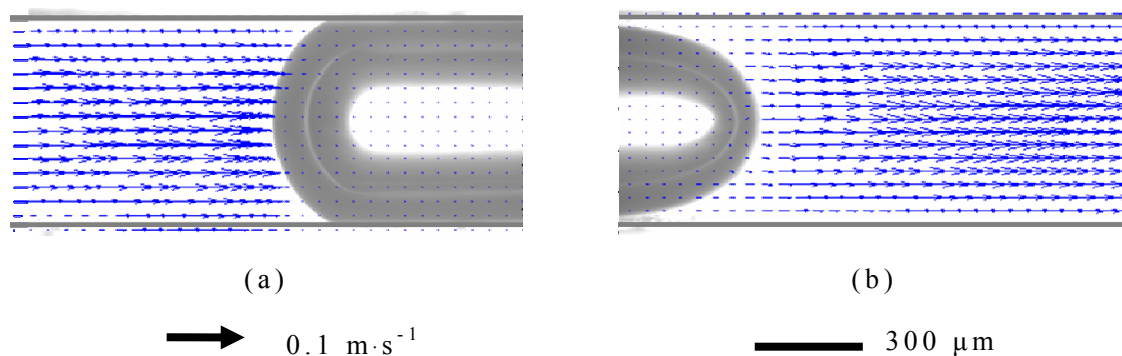


图 4-27 弹状气泡前后流速场

Fig. 4-27 Velocity fields at the tip and rear of the slug bubble in the microchannel. $L/W_c = 2.25$

图 4-28 显示了 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 微通道内氮气—0.5 wt%SDS 和 62 wt%甘油水溶液系统的气泡流型图。当液体流速小于 $6000 \mu\text{L}/\text{min}$ 的时候，弹状气泡/孤立小气泡、孤立小气泡/卫星气泡的转变线受气液流速度的影响；当液体流速高于 $6000 \mu\text{L}/\text{min}$ 的时候，流型转变线受液体流速影响比较小。

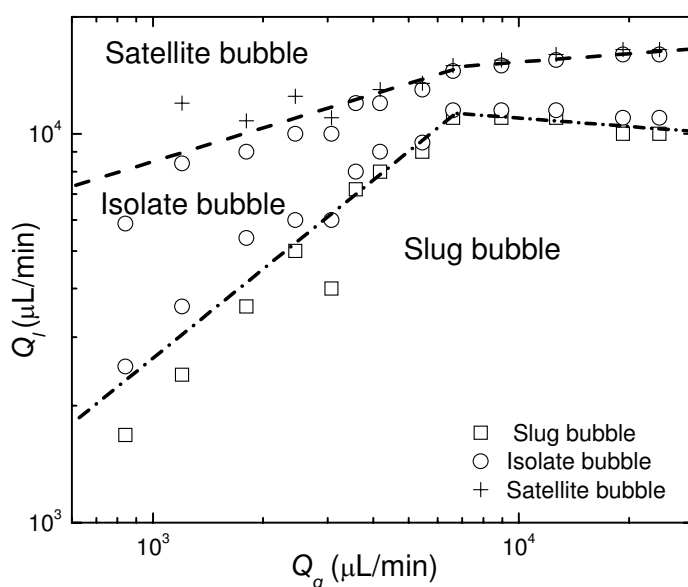


图 4-28 聚焦流十字型接触口的气液两相流流型

Fig. 4-28 Two-phase flow patterns map at the cross-junction. Gas phase: N_2 ; liquid phase: 0.5 wt% SDS and 62 wt% glycerol -water mixture, $600 \times 600 \mu\text{m}$ microfluidic device. - - - - the transition line for satellite/isolate bubble; - . - . the transition line for slug/isolate bubble

4.3.1.2 弹状气泡的生成尺寸、过程及原理

1 生成尺寸

图 4-29 显示了 $400 \times 400 \mu\text{m}$ 微通道内弹状气泡在不同条件下的生成周期图片。在低液体流速 $Q_l = 840 \mu\text{L}/\text{min}$ 时，气泡的长度要远比管道的宽度值大。当液体流速增加到 $Q_l = 3360 \mu\text{L}/\text{min}$ 时，气泡长度变短。连续流体的粘度越大，生成的气泡越小。在本实验中，发现表面张力对气泡生成尺寸几乎没有影响，表面活性剂为 SDS 和吐温 80。这可能是由于在静态宏观条件下测量得到的表面张力值并不适用于快速动态的气泡生成过程^[82]。这也说明弹状气泡的破裂机理不只由剪切力和表面张力控制^[58]。Dietrich 等^[81]比较了微通道内气泡形成过程中的三种主要力的级数关系：剪切力（黏性力） $\tau = \mu du/dy$ ，动能（惯性力） $\Delta P = \rho u^2/2$ ，表面能（表面张力） $\Delta P_\sigma = 2\sigma/(W_c/2)$ 。本实验中这三个力的范围为： $\tau = [0.09, 40] \text{ Pa}$ ； $\Delta P = [0.1, 80] \text{ Pa}$ and $\Delta P_\sigma = [210, 720] \text{ Pa}$ 。所以各个力的大小顺序为：黏性力 < 惯性力 < 表面张力。占主导地位的表面张力可以解释气液表面张力值几乎对气泡生成尺寸没有影响的实验现象^[57, 58, 76, 81]。所以本文主要讨论气液流量比、连续相流体的粘度以及微通道的尺寸对气泡生成的影响。

图 4-30 显示了气泡生成尺寸的影响因素。图 4-30a 表明，在既定的气体流速情况下，生成的气泡尺寸随着液体流量的增大而减小；在一定的液体流量下，随着气体流量的减小而减小。在方形截面的第三类型聚焦流微通道内，Cubaud 等^[80]认为气泡生成周期 T 与液体流量成反比，所以生成气泡的长度 L 为生成周期与两相表观流速 u_m 的乘积： $T \propto W_c^3/Q_l$ ， $u_m \propto (Q_l + Q_g)/W_c^2$ ， $L \propto T u_m \propto W_c(Q_l + Q_g)/Q_l$ ，所以生成的气泡的长度可以无量纲化处理为 $L/W_c \propto (Q_l + Q_g)/Q_l$ 。这个关系表明生成气泡的尺寸与气液流量的关系，本实验气泡尺寸随流量变化趋势与该式一致。

Garstecki 等^[58]在第二种类型的聚焦流十字型微通道内研究了气泡的生成并发现生成气泡的体积 V 与气液流量以及液体粘度的关系为： $V \propto Q_g/Q_l \mu$ ，本实验中，0.5 wt% SDS 的水溶液中加入不同浓度的甘油用于连续相流体，用于考察粘度对气泡生成的影响，结果如图 4-30b，生成气泡的尺寸随着连续相流体的粘度的增加而减小。

本实验结果显示第三类聚焦流十字型微通道内粘度对气泡生成尺寸的影响与第二种类型内的结果类似。

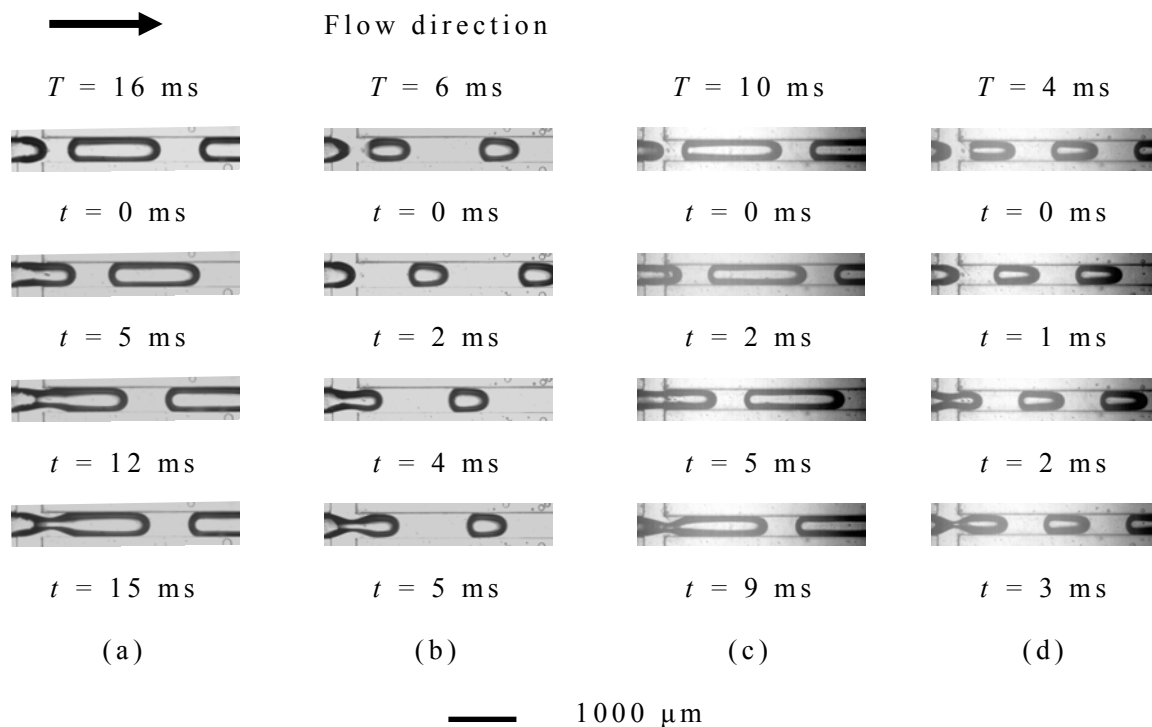


图 4-29 $400 \times 400 \mu\text{m}$ 微通道内气泡的生成过程图

Fig. 4-29 Image sequence of the evolution of the periodic bubble formation process in a $400 \times 400 \mu\text{m}$ microfluidic device. (a) 0.5 wt% SDS and 25 wt% glycerol -water mixture, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 840 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) 0.5 wt% SDS and 25 wt% glycerol -water mixture, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 3360 \mu\text{L}/\text{min}$; (c) 0.5 wt% SDS -water mixture, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 840 \mu\text{L}/\text{min}$; (d) 0.5 wt% SDS -water mixture, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 3360 \mu\text{L}/\text{min}$

微通道的尺寸对气泡生成大小的影响见图 4-30c。在一定的气液流量下，生成气泡的尺寸随着微通道的增大而增大。气泡的生成周期是气体头夹断距离和液体流量的函数，可以表示为 $T \propto W_c^3 / Q_l$ 。在相同的气液流量下，宽的管道使气泡生成周期变长，所以生成的气泡也大。

表面张力的影响见图 4-30d，从图可以看出，表面张力几乎对气泡生成尺寸没有影响，不论表面活性剂是 SDS 还是吐温 80。

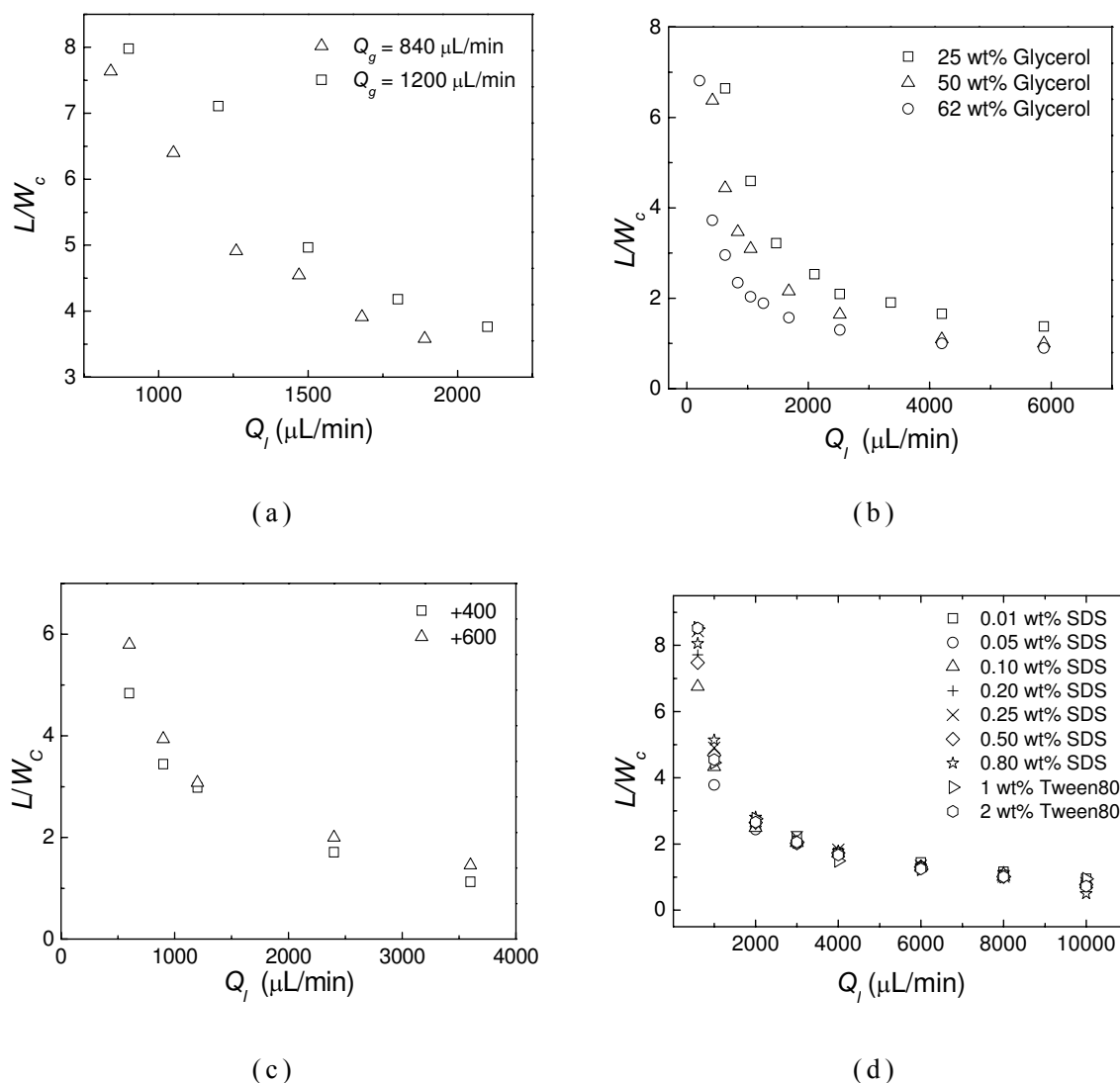


图 4-30 气泡生成尺寸的影响因素

Fig. 4-30 Effects of various parameters on the bubble size: (a) gas and liquid flow rates, +600, liquid phase: 0.25 wt% SDS; (b) liquid viscosity, +600, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$; (c) size of microfluidic devices, $Q_g = 1200 \mu\text{L}/\text{min}$, 50 wt% glycerol; (d) surface tension, +400, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$

影响气泡尺寸的因素为：气液流量比、液体粘度以及微通道的尺寸。可以通过无量纲化关联气泡的尺寸 L/W_c 与气液流量比 ϕ 、连续相流体的雷诺数 $Re = \rho u W_c / \mu$ ，其中 $u = Q_l / W_c^2$ ，用最小二乘法回归了 120 个实验数据，结果如下：

$$L/W_c = 1.40 \phi^{1.10} Re^{0.46} \quad (4-19)$$

计算值与实验值平均相对误差为 16.22%，最大相对误差为

38.49%。这个关系式由实验关联得到，适用范围为：液体粘度 $1\sim 10\text{ mPa}\cdot\text{s}$ ，表面张力 $30\sim 72\text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ ，方形截面微通道尺寸 $400\sim 600\text{ }\mu\text{m}$ 。气液流量比范围为 $0.1\sim 4$ ，液相雷诺数范围 $0.66\sim 144.93$ 。

2 生成过程概述

气泡生成过程可以用高速摄像机观察并记录下来。图 4-31a 是一个正在经历夹断过程的气泡头的示意图。对气泡头部的实时记录和定量分析有助于深入研究气泡夹断破裂机理。通过分析图片，记录了气泡头颈部 W_m 的演变过程（对于膨胀阶段， W_m 表示最大的颈部宽度；而对夹断阶段， W_m 表示最小的颈部宽度，图 4-31b-c）；气泡头顶部离引入气相管道上游壁面的距离 L_t ，以及其二维平面面积 A 。

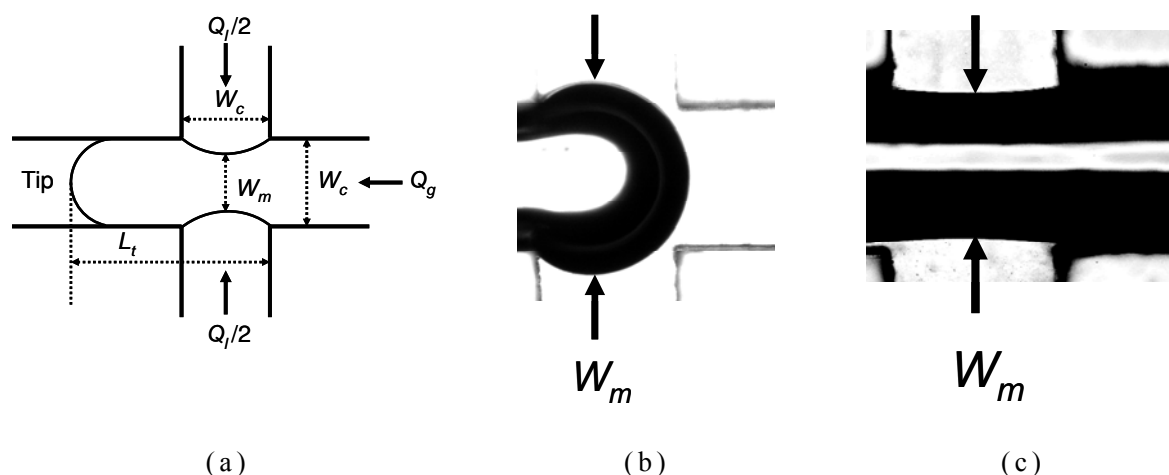


图 4-31 气泡头示意图

Fig. 4-31 (a) Scheme of the cross-junction and the gas-liquid interface. The Fig. defines the dimensions of the junction region: the width of the channel ($W_c = 600\text{ }\mu\text{m}$). For the analysis of breakup, we traced the evolution of the maximum (for expansion stage) and minimum (for collapse stage) width W_m and the length L_t of the gaseous thread tip as setting the end of the gaseous introducing channel as zero. We also plotted the calculated area A of the two-dimensional thread; (b)-(c) scheme of the maximum width (expansion stage) and the minimum width (collapse and pinch off stage) of the gaseous thread W_m

一个典型的气泡破裂过程可以概述为三个阶段（图 4-32a-f）：首先，在前一个气泡脱离后，气体头部回缩一小段时间 t_w 后主要在轴向方向膨胀，一直到其接触到出口管道的边缘（图 4-32a-b），但是在径向方向的膨胀幅度不大，所以 L_t 增长幅度比较大，而 W_m 增长幅度较小，这个阶段称为膨胀阶段，经历的时间为膨胀时间 t_e ；接着，聚焦流体驱动气相头在轴向方向发展，并形成可见的颈部，颈部宽度以一个几乎恒定的速度减小，气泡头顶部向下游发展（图 4-32c-e），这个阶段称为夹断阶段，历经的时间为夹断时间 t_c ；最后一个阶段为脱离阶段，气泡头以很快的速度破裂并脱离（图 4-32e-f），历经的时间为脱离时间 t_p 。这个过程与第二种聚焦流十字型微通道内气泡生成类似^[57]。

在 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 微通道内，当气体流度为 $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$ ，液体流速为 $Q_l = 840 \mu\text{L}/\text{min}$ 时，氮气在含 0.5 wt% SDS 和 62 wt% 甘油的水溶液中的生成过程的颈部演变过程 $W_m(t)$ 见图 4-32g。这个条件下生成气泡的周期为 $T = 88 \text{ ms}$ ，弹状气泡的长度为 1.35 mm，回缩等待时间为 $t_w = 24 \text{ ms}$ ，膨胀时间为 $t_e = 18 \text{ ms}$ ，夹断时间为 $t_c = 40 \text{ ms}$ ，脱离时间为 $t_p = 6 \text{ ms}$ 。在回缩等待时间，气泡头的宽度维持在一个恒定的值，然后经历膨胀阶段发展到其最大值；在第二阶段，气泡头的颈部缩小很快，而且几乎以一个恒定的速度（图 4-33）缩小。气泡的生成过程由第二个阶段控制。本文从不同条件的实验值中提取了第二阶段的气泡头颈部的缩减速度 $\Delta W_m / \Delta t$ ，以考察操作条件对气泡夹断速度以及生成过程的影响。

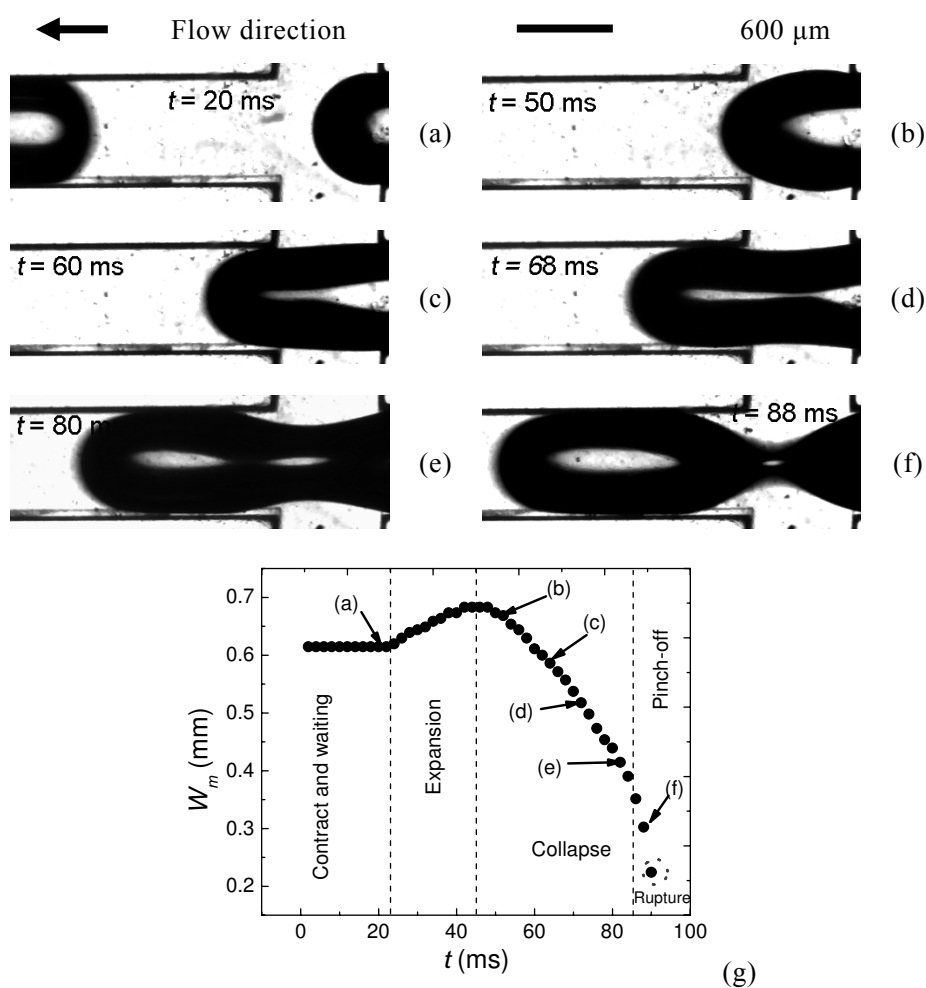


图 4-32 气泡生成过程图以及气泡头颈部的演变过程

Fig. 4-32 (a)-(f) Optical micrographs of the evolution of the periodic bubble formation process; (g) temporary evolution of the bubble thread during the formation process. Gas phase: N_2 ; Liquid phase: 0.5 wt% SDS and 62 wt% glycerol -water mixture, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 840 \mu\text{L}/\text{min}$

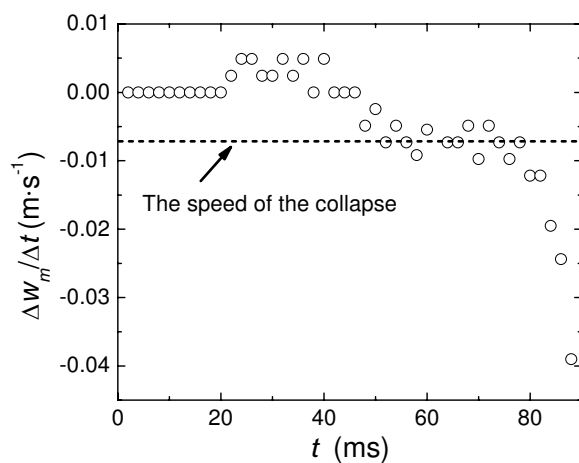


图 4-33 夹断过程的平均夹断速度

Fig. 4-33 Temporal evolution of the width of the thread $\Delta W_m/\Delta t$

3 生成过程的第一阶段—膨胀过程

图 4-32 例子中，气泡头经历了大约 24 ms 的回缩等待时间后，开始进入膨胀阶段。

Yu 等^[83]模拟了该类型装置内弹状气泡生成过程中气液两相在界面附近的压力变化过程，发现气液两相流的压力差是气泡生成的主要控制因素（见图 4-34）。在膨胀阶段之前的回缩等待期，由于凹的气液界面两边的拉普拉斯压力，气体引入管内的压力总是比液体内的压力高（A 点）。随着气体头的发展，界面的曲率半径减小，气液界面的压力减小，所以两相的压力差减小。一旦气体头延伸入下游主管道，并使之堵塞，液体内的压力开始上升。界面通常由凹面变为凸面，所以液体内的压力要高于气体内的压力（B 点）。当气体头颈部的宽度变为最小的时候，液体内的压力达到最大值（C 点）。当气泡脱离离开后，液体内的压力降低，而气体内的压力升高。气体内的压力又高于液体内的压力（D 点）。这样，又开始了一个新的周期。两相内的压力将可以用拉普拉斯压力来表征，说明气泡形成过程可以看作是一系列的平衡状态组成。压力随时间的变化特征也说明了在低的毛细管数 Ca 时，压力（积压）是气泡形成过程中的驱动力^[57, 83]。

本实验中，液相流体用微泵驱动，而气相由储气钢瓶提供并经针形阀控制。气液两相流体内的压力随着气液流量、液体粘度、管道尺寸的变化而变化^[80]。控制这些条件，就可以控制两相内的压力。

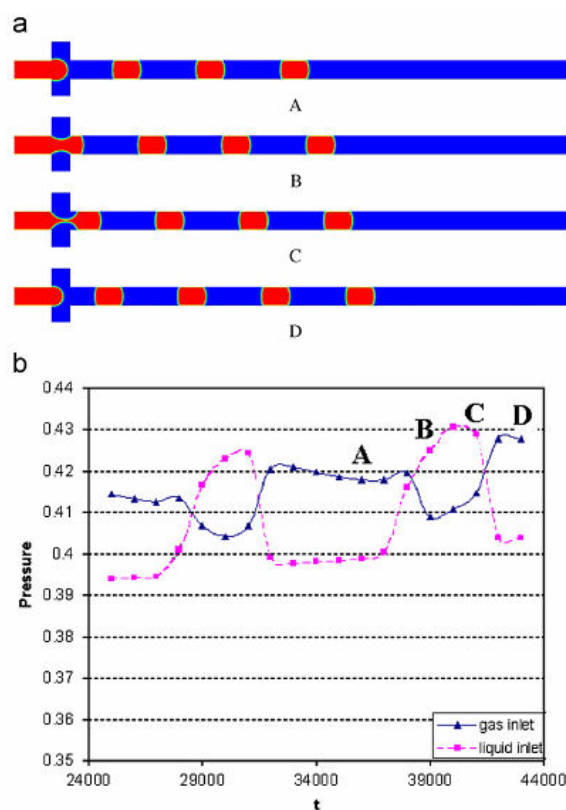


图 4-34 气泡形成过程中界面附件气液两相内压力变化^[83]

Fig.4-34 Simulation results for $Ca=0.006$, $Q_g/Q_l = 1/2$. (a) Snapshots of the bubble formation process; (b) pressure variation at the gas and liquid inlets during bubble formation, time points A–D correspond to the four snapshots in (a)^[83]

4 生成过程的第二阶段—稳定的(2D)夹断过程

图 4-35 显示了连续相流体的粘度对夹断速度 $\Delta W_m/\Delta t$ 和夹断时间 t_c 的影响。夹断速度 $\Delta W_m/\Delta t$ 随着连续相流体的粘度的增大而增大，夹断时间 t_c 随着连续相流体的粘度的增大而减小。显然，连续相流体粘度的增大使剪切力增大，进而加快了气泡的形成过程，所以粘度越大，夹断时间越短，夹断速度越大。相比另外两种粘度来说，含 62 wt% 甘油的水溶液流体的速度大于某一值时 ($Q_l > 2000 \mu\text{L}/\text{min}$)， $-\Delta W_m/\Delta t$ 有个突增值。这个时候的连续相流体的雷诺数大于 5，气泡头的破裂过程由惯性—粘度控制，高粘度值引起的剪切力的增大加速夹断速率的程度更强烈。连续相流体的体积流量对夹断时间 t_c 的影响见图 4-35b。夹断时间 t_c 随液体流量的增大而呈非

线性减小。连续相流体的动量的增加加快了气泡头部的夹断速度，致使夹断时间缩短。

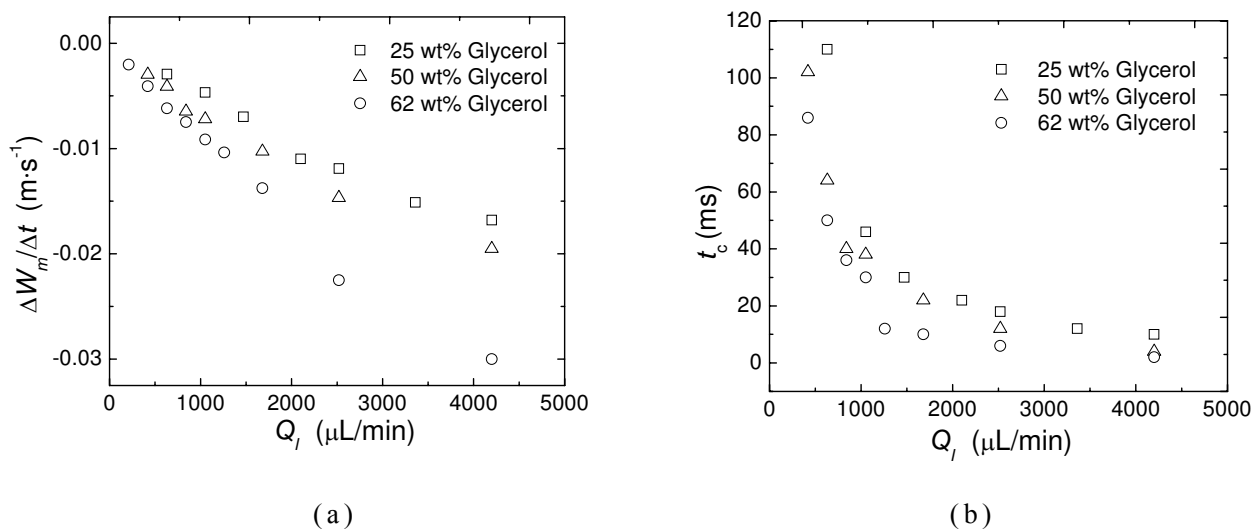


图 4-35 连续相流体的粘度对夹断速度和夹断时间的影响

Fig. 4-35 Effects of viscosity of the continuous phase on the collapse rate $\Delta W_m/\Delta t$ and the collapse time t_c . Glycerol -water mixture with 0.5 wt% SDS, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$

本实验的结果与 Garstecki^[57] 等得到的夹断速率只受液体流量的影响的结论不一样。本实验中，在弹状气泡形成周期内，延伸到下游主通道内的气体头受限于微通道全部壁面，为“完全受限的气泡破裂过程”：气泡头在主通道内不能在径向自由膨胀，其发展行为受微通道壁面的限制。Garstecki^[57] 等的实验中所用的微通道为第二种类型，大的收集腔与十字型交口之间连有一个窄而短的小孔。一旦气泡头延伸到腔内，就能在径向和轴向自由发展，仅仅受限于窄而短的小孔，为：“部分受限的气泡破裂过程”。聚焦流微通道结构的不同，产生不同的气泡破裂机理。

根据经典的毛细管破裂理论，分散相头的夹断速度与来流速度无关，能与 Oh 数关联， $Oh^2 \equiv Ca/Re = \mu^2/(\rho\sigma l)$ (Ca 为毛细管数 $Ca = \mu l/\sigma$ ， Re 为雷诺数 $Re = \rho u l/\mu$ ， l 是径向特征尺寸)。若 $Oh < 1$ ，夹断速率为 $u_c \approx (\sigma/\rho l)^{1/2}$ ；若 $Oh > 1$ ， $u_c \approx (\sigma/\mu)$ 。本实验中装置特征尺寸为 $l = 400\sim 600 \mu\text{m}$ ， $\mu \approx 1\sim 10 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ ， $\rho = 1000 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ， $\sigma \approx 30\sim 72 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ ，计算得到的 Oh 数范围为 $Oh \equiv (Ca/Re)^{1/2} = \mu/(\rho\sigma l)^{1/2} \approx 0.006\sim 0.073$ ，夹断

速度为 $u_c \approx (\sigma/\rho l)^{1/2} \approx 0.22 \sim 0.26 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ，这种估算值比本实验测量得到的夹断速度高 1~2 个数量级。

Papageorgiou^[134]得到了忽略重力条件下，牛顿流体历经毛细夹断过程时，其颈部足够小 $W_m \leq \sqrt{\sigma/\rho g}$ 的时候的表达式为 $W_m = 0.0709\sigma(t_b - t)/\mu$ 。其中临界破裂时间 $t_b = 14.1\mu l/\sigma$ 。这个表达式表明牛顿流体颈部夹断速率恒定，这与本实验现象相似。用该式计算夹断速度为 $dW_m/dt = 0.0709\sigma/\mu \approx 0.21 \sim 2.83 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ，此计算结果比本实验以及 Garstecki^[57] 等实验中的夹断速度高 1~3 个数量级。显然，基于理想的一维毛细驱动破裂理论预测式只适用于非常简单的情况。

值得注意的是，本文的实验结果与 Cubaud 等^[80]、Gañán-Calvo 等^[76]的实验结果类似。不管上面讨论的毛细破裂属于哪种方式，比较结果的不同显示在微通道内气泡的破裂机理是不同的。对于夹断时间 t_c ，Cubaud 等^[80]认为气相阻力对液体流过十字型接触口来说可以忽略，并估算了第三种聚焦流十字型微通道内液体使气相头夹断并脱离的时间为 $T = W_c^3/Q_l$ 。这个夹断时间的计算式与圆形结构内结果相同^[76]。本文中用该式计算得到的生成周期为 $T = 3 \sim 26 \text{ ms}$ 。数量级与本文实验结果吻合，说明夹断过程主要由液体动量控制，而具体数据的差距也许来自于流体驱动方式的不同。Cubaud 等^[80]用气压压力驱动液体，而本实验用微泵驱动液体。而且，该关联式不能直接用于本实验，因为液体的粘度也在一定程度上影响夹断时间。

本节实验结果发现：（1）气体头颈部的夹断速率主要由液体流速控制，但也在一定程度上受液体粘度影响；（2）夹断速率比毛细破裂理论的计算值小很多。Garstecki^[57]等认为这个差异来源于液体的泵驱动方式。当气体头延伸入主管道以及其颈部宽度达到最大值以后，液相流以一定速度聚焦在气体头颈部，而泵则不断提高供压来维持恒速。液相内增加的静压力以正比于液体流速的速度挤压气液界面。而且，液体对气泡头的粘性曳力在轴向方向影响挤压过程。为了证明这一推断，下面追踪了气体头顶部距离以及气体头二维面积 A 的演变过程，并关联了无量纲夹断速率 $(\Delta W_m/\Delta t)/u_l$ 以及无量纲夹断时间 $t_c/(W_c/u_l)$ 与气液流量比 ϕ 以及液体雷诺数 Re 的关系^[57, 76, 80]。并在本节内容 6，用 micro-PIV 测量了气泡形成过程中气体头周围的液体流场分布情况。

图 4-36 显示了气体头顶部速度随时间的变化过程。在第一阶

段，气体头的发展由气相控制，以 Q_g 流量提供气体。十字型接触口的液体只使这一阶段的气体头的速度少量加速。第二阶段，气体头在下游主通道堵塞住液体，液体受阻，压力升高，挤压气体头，使之顶部经过一段时间的加速直至到达最大值。这也是第二阶段气体头顶部的速度远大于第一阶段的速度的原因^[100]。由这一点，也知道聚焦流十字型弹状气泡的形成由夹断阶段主导，并主要受液体流量控制。

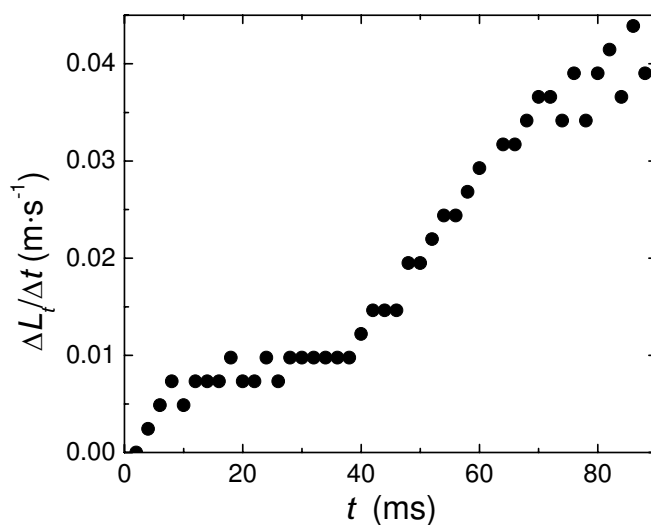


图 4-36 气体头顶部的速度 $\Delta L_t/\Delta t$ 演变过程

Fig. 4-36 Temporal evolution of the thread tip velocity $\Delta L_t/\Delta t$. Gas phase: N_2 ; liquid phase: 0.5 wt% SDS and 62 wt% glycerol -water mixture, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 840 \mu\text{L}/\text{min}$

图 4-37a 显示了气体头二维面积 A 的演变过程。二维面积 A 在第一阶段的速率远小于在第二阶段的速率。而且，二维面积 A 的增长呈现非线性化，这也许是因为气体头与壁面之间液膜引起的。图 4-37b 显示了气体头二维面积 A 无量纲化 $W_c(\Delta A/\Delta t)/Q_l$ 的演变过程。该图表明液相流挤压气体头发展，并使之加速直到二维面积 A 的增长速度达到其最大值，而此时，气体头周围的液体速度急剧增大，并最终夹断气体头并使之脱离。再次说明，气体头的发展过程主要由液体流量控制。

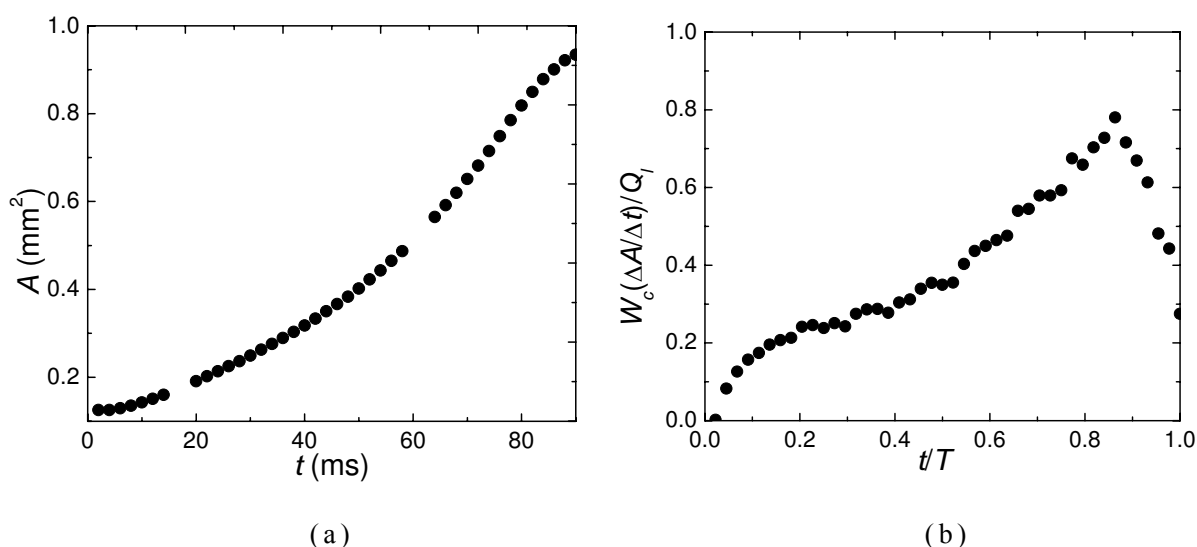
图 4-37 气体头二维面积 A 的演变过程

Fig. 4-37 (a) Temporal evolution of the cross-sectional area A of the thread; (b) normalized rate evolution of the cross-sectional area A as $W_c(\Delta A/\Delta t)/Q_l$ vs. dimensionless time. Gas phase: N_2 , $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$; liquid phase: 0.5 wt% SDS and 62 wt% glycerol -water mixture, $Q_l = 840 \mu\text{L}/\text{min}$

气液流量、液体粘度等影响气体头的夹断速度 $\Delta W_m/\Delta t$ 和夹断时间 t_c 。将无量纲化的夹断速度 $(\Delta W_m/\Delta t)/u_l$ 与无量纲数液体雷诺数 $Re = \rho u l/\mu$ 以及气液流量比 φ 关联, 通过最小二乘法的线性回归得到:

$$(\Delta W_m/\Delta t)/u_l = 0.27\varphi^{-0.35} Re^{-0.39} \quad (4-20)$$

该式表明, 相比液体粘度的影响, 液体流量对夹断速度的影响要更大。该式的平均相对误差为 14.31%。

定义了一个特征时间 t_l 对夹断时间 t_c 进行无量纲化处理。特征时间 t_l 为液体经过十字形截面的时间:

$$t_l = W_c/u_l \quad (4-21)$$

无量纲化得到的夹断时间与操作参数的关系经过线性回归得到:

$$t_c/t_l = 1.10\varphi^{0.85} Re^{0.53} \quad (4-22)$$

该式的平均相对误差为 27.87%。

以上两式 4-20, 4-22 可以用来估算第三种聚焦流十字型微通道内弹状气泡生成过程的夹断速度和夹断时间。进而结合其他参数,

可以用来预测生成气泡的尺寸和频率。

5 生成过程的第三阶段—非稳定的夹断(3D)及脱离过程

如图 4-38 所示, 在膨胀和夹断阶段, W_m 平稳的发展, 其最大值为 $780 \mu\text{m}$, 过后, 以一恒定的速度缩小。本节内容 4 已经讨论了该速度同时由气液流量比和液体雷诺数控制。夹断和脱离阶段的转变发生于 W_m 为 $550 \mu\text{m}$ (图 4-38a), 脱离阶段的最终破裂点发生于 W_m 为 $200 \mu\text{m}$, 在该点, 气体头急剧缩小脱离并形成一个新的气泡。

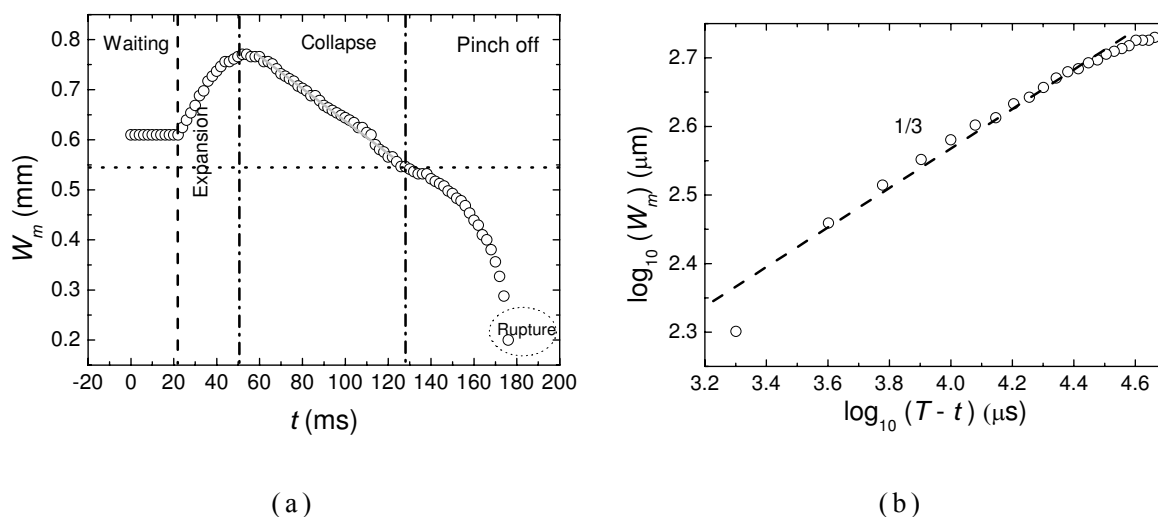


图 4-38 气泡形成过程中气体头颈部演变过程以及脱离阶段的特征
Fig. 4-38 (a) Temporal evolution of the neck of the gaseous thread W_m ; (b) logarithm of the minimum width of the gaseous thread W_m in μm as a function of the logarithm of the remaining time $(T-t)$ in μs for the pinch off stage.

+600, 50 wt% Glycerol, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 420 \mu\text{L}/\text{min}$

对气泡的脱离阶段, Dollet 等^[56]建立了一个表征 W_m 与破裂剩余时间 $(T-t)$ 的相似率: $W_m \propto (T-t)^{1/3}$ 。他们指出这个阶段是不稳定的, 由气液惯性力驱动而不是毛细管作用。而对于气泡在静态低粘度液体 ($\mu < 10 \text{ mPa}\cdot\text{s}$) 内的夹断脱离过程, W_m 与破裂剩余时间 $(T-t)$ 的相似率: $W_m = 1.22(W_c\sigma/\rho)(T-t)^{1/2}$, 此情况惯性力与表面张力平衡^[135]。本实验中, 所有脱离阶段的气体头颈部宽度与剩余时间的指数为 0.31 ± 0.03 , 见图 4-38b, 非常接近 $1/3$: $W_m \propto (T-t)^{1/3}$ 。这两者细微的差别也许来自微通道的壁面效应。当然, 气体头颈部宽度 W_m 依赖于气

液流量、液体粘度以及管道尺寸，如图 4-39。这些参数考虑在内得到的相似率为 $W_m = 18.62\varphi^{-0.15} Re^{0.04} (T-t)^{1/3}$ ，雷诺数指数很小，所以可以认为 $W_m = 18.62\varphi^{-0.15} (T-t)^{1/3}$ 。而且，除了与时间的关联外， W_m 随着液体流量和管道尺寸的增大而增大，随着液体粘度和气液流量比的减小而增大。上面得到的关联式的平均相对误差为 0.22%（图 4-40）。从图 4-40 可以看出，对于+600、+400 微通道内形成的气体头的颈部宽度，第二阶段和第三阶段的转变通常分别发生在 550 μm 、400 μm ，最后破裂通常分别发生在 220 μm 、160 μm 。

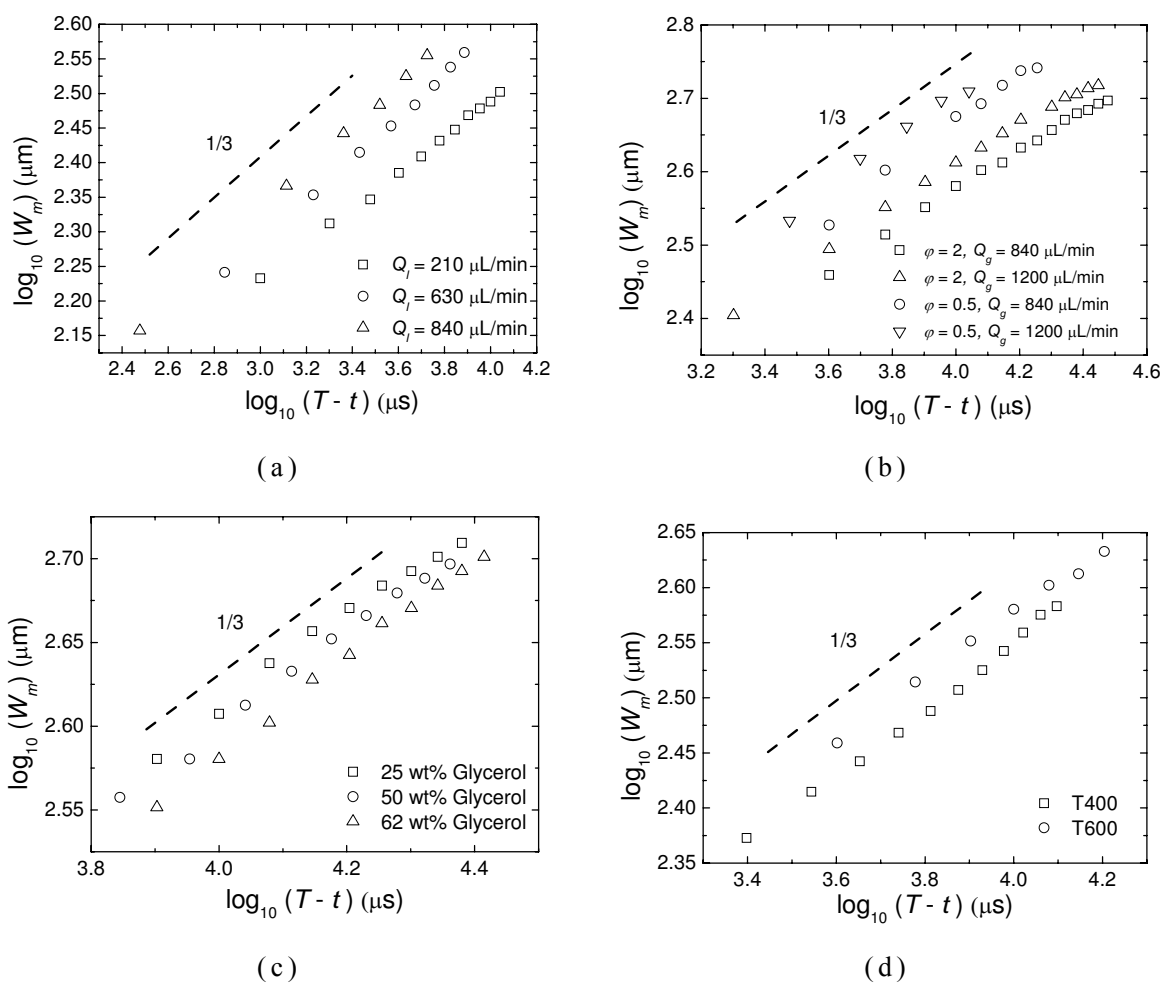


图 4-39 气泡脱离阶段气体头颈部最小宽度与剩余时间的关系

Fig. 4-39 Scaling of W_m in function of the time $(T-t)$ for the pinch off stage: (a) liquid flow rate Q_l , +400, 50 wt% glycerol, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) ratio of gas/liquid flow rates φ , +600, 50 wt% glycerol; (c) liquid viscosity, +600, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 630 \mu\text{L}/\text{min}$; (d) size of the microfluidic device, 50 wt% glycerol, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 420 \mu\text{L}/\text{min}$

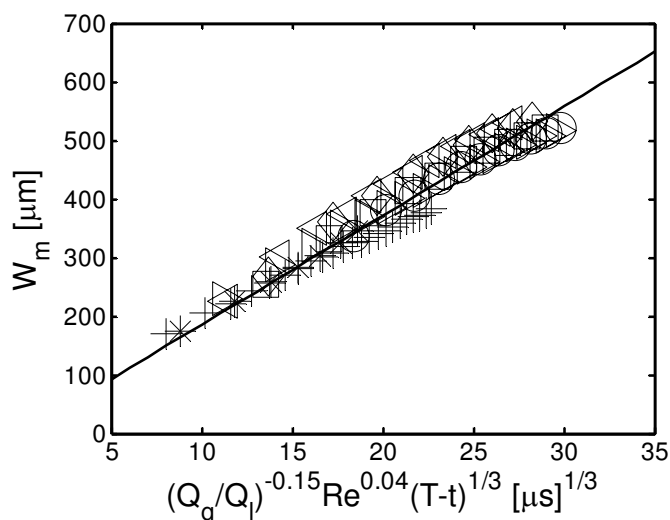


图 4-40 气泡头颈部在脱离阶段的最小宽度与剩余时间的关联

Fig. 4-40 Relationship between the minimum width of the gaseous thread W_m and the scaled product of $\varphi^{-0.15} Re^{0.04} (T-t)^{1/3}$. The slope is 18.62. Symbols correspond to different gas and liquid flow rates, viscosity of the liquid phase and the size of the microfluidic device. (+): +400, 50 wt% glycerol, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 210 \mu\text{L}/\text{min}$; (O): +600, 25 wt% glycerol, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 630 \mu\text{L}/\text{min}$; (\square): +600, 50 wt% glycerol, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 1050 \mu\text{L}/\text{min}$; (\diamond): +600, 25 wt% glycerol, $Q_g = 1200 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 1200 \mu\text{L}/\text{min}$; (\triangleleft): +600, 62 wt% glycerol, $Q_g = 1200 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 600 \mu\text{L}/\text{min}$; (\triangleright): +600, 62 wt% glycerol, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 420 \mu\text{L}/\text{min}$; (\times): +400, 50 wt% glycerol, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 630 \mu\text{L}/\text{min}$

6 弹状气泡生成过程周围流场分布的 micro-PIV 测量

气泡形成过程中周围流场的测量，能为流体对气泡形成过程的影响提供量化信息^[70, 81, 82, 119]。图 4-41 给出了 0.8 wt% SDS 水溶液中气泡形成过程连续相液体内的速度场分布情况。流体流量为 $Q_l = 600 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$ 。形成气泡的周期为 $T = 218 \text{ ms}$ 。膨胀时间为 $t_e = 54 \text{ ms}$ ；夹断时间为 $t_c = 156 \text{ ms}$ ；脱离时间为 $t_p = 8 \text{ ms}$ 。 $t = 0 \text{ ms}$ 时，一个新的气泡生成周期开始，液体内流场分布与 T 型接触口两臂液体并流入主通道内流场分布类似。 $t = 10 \text{ ms}$ 时，

气泡主要在径向发展，气液流体基本不彼此影响。所以，液相流体流场内流场分布与 $t = 0 \text{ ms}$ 时流场类似。 $t = 44 \text{ ms}$ 及 $t = 54 \text{ ms}$ 时，为膨胀阶段。气体头在径向方向小幅度发展，发展到主通道内的气体头阻碍液体，所以液相流体速度明显下降。 $t = 54 \text{ ms}$ 时，气体头颈部宽度达到其最大值。气液界面曲率达到最小值。界面的拉普拉斯压力达到最大值。颈部周围流体速度达到最小值。 $t = 74 \text{ ms}$ 及 $t = 206 \text{ ms}$ 时，气体头经历第二阶段。 $t = 74 \text{ ms}$ 时，液体挤压气体头，并从其周围流过。液体流场方向分为轴向和径向方向。 $t = 206 \text{ ms}$ 时，液体径向方向占主导地位。液体在气液界面分流：一部分流向气体引入管；一部分流向出口管道。 $t = 218 \text{ ms}$ 时，气泡破裂脱离后，周期结束，生成的气泡流向出口管道。液体在十字型接触口分流：一部分由于气体头回缩流向气体引入管；一部分流向出口管，并驱使形成的弹状气泡流向出口。与毛细作用不稳定破裂机理不同的是，聚焦流完成受约气体头夹断过程中由液体控制：一部分液体动量起拉伸作用推动气体头向下流发展；一部分由于液体速度及粘度引起的剪切力作用使气体头缩小。在整个气泡形成过程中，液相流体主导气体头行为。气体头周围流场的分布也验证了 Garstecki 等^[57]提出的积压机理：气体头延伸入十字型接触口以及出口，阻碍液相流体，受阻的液体内积累压力并挤压气体头颈部使之夹断破裂脱离。流场测量结果还显示了，气泡脱离时刻，由于气相头的回缩，液体进入气体引入管。所以新的膨胀阶段开始前，有一个等待过程，气体需要将气体引入管内的液体赶出来，才开始新的过程。

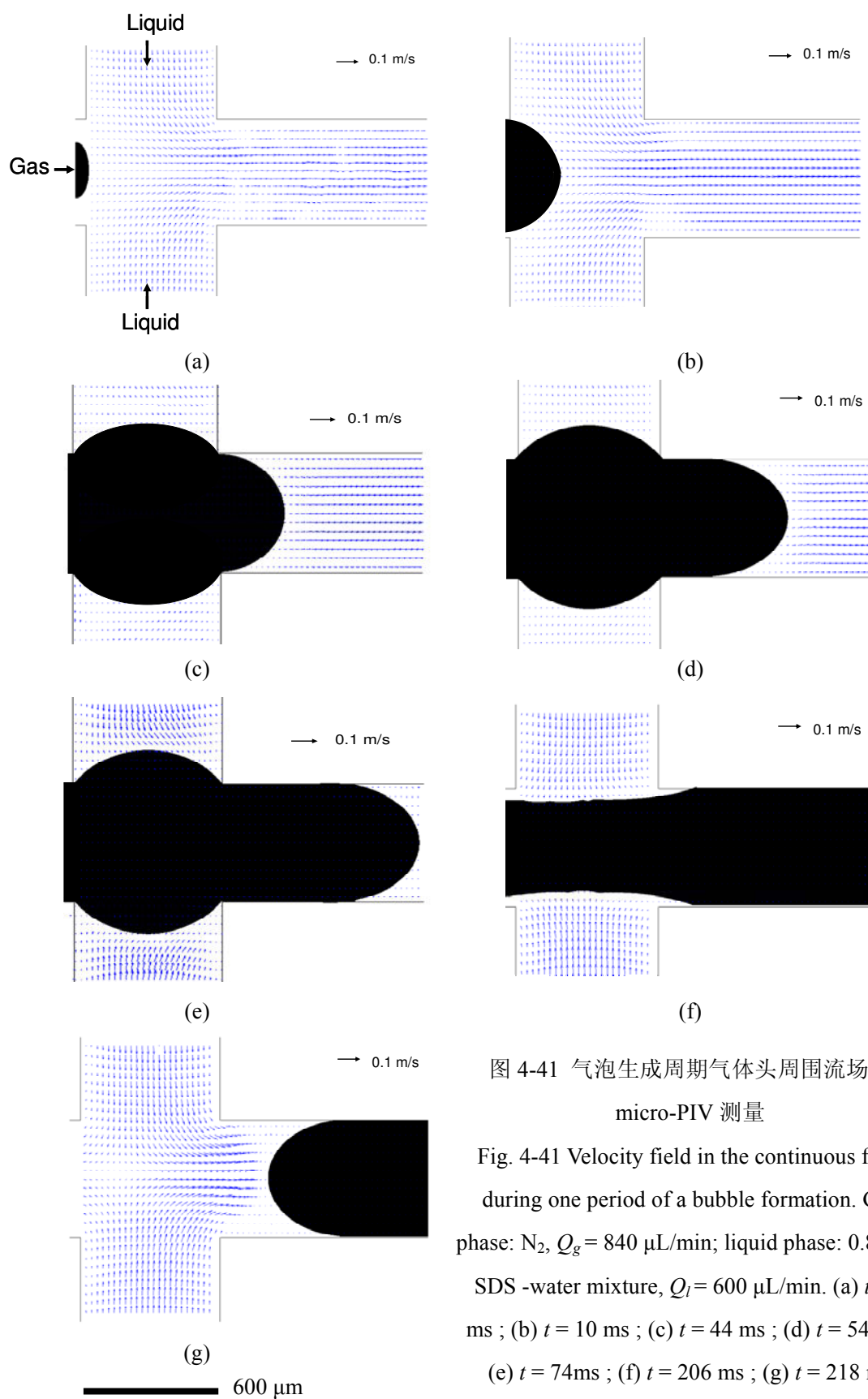


图 4-41 气泡生成周期气体头周围流场的 micro-PIV 测量

Fig. 4-41 Velocity field in the continuous flow during one period of a bubble formation. Gas phase: N_2 , $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$; liquid phase: 0.8 wt% SDS -water mixture, $Q_l = 600 \mu\text{L}/\text{min}$. (a) $t = 0$ ms ; (b) $t = 10$ ms ; (c) $t = 44$ ms ; (d) $t = 54$ ms ; (e) $t = 74$ ms ; (f) $t = 206$ ms ; (g) $t = 218$ ms

7 结论

气泡尺寸随着液体流量和粘度的增大而减小，随着气体流量和管道宽度的增大而增大。在实验基础上，提出一个基于气液流量比以及液体雷诺数的气泡尺寸预测式，该内容拓展了其他研究者的工作^[56-58, 76, 80]。结果表明惯性力作用对气泡生成尺寸起重要作用。

弹状气泡形成过程可以分为三个阶段：膨胀阶段、夹断阶段和脱离阶段。膨胀之前有一段等待时间。气泡形成过程的气泡头的演变过程用高速摄像仪进行了记录并对图片进行了定量分析。气泡生成过程主要由夹断阶段控制，而夹断速率和夹断时间受气液流量和液体粘度影响。这些结果与其他研究者得到的结果吻合^[76, 80]。第三种聚焦流十字型微通道内弹状气泡的夹断速度比经典毛细作用夹断原理计算值要小至少一个数量级。这也符合逻辑，因为表面张力对微通道内气泡生成过程没有影响。液体对气体头的拉伸和剪切作用是其夹断破裂脱离的主要控制力，而不是毛细不稳定作用。关于拉伸力以及剪切力随气泡生成过程的影响，需要更进一步的研究：考察管壁、通道截面形状、通道尺寸等影响。提出了基于无量纲数的夹断速度和夹断时间的关联式。

气泡生成的最后阶段，气体头颈部的最小宽度可以与剩余时间关联为： $W_m = 18.62\varphi^{-0.15}(T-t)^{1/3}$ 。

气泡形成过程中气体头周围流体的流场用 micro-PIV 进行了测量，并用来解释了气泡生成机理。

本节定量研究了第三种聚焦流十字型微通道内“完全受限”的弹状气泡的生成过程，研究结果为进一步的实验以及模拟研究打下了基础^[136, 137]，能为微尺度内化工过程的工业化应用提供设计依据和理论指导。

4.3.1.3 泡状气泡的生成

由图 4-28 可以看出，当液体流量大到一定值的时候，出现泡状流。本实验中所有的实验数据，在 $0.04 < Ca < 0.17$ 范围内，产生泡状流；在 $0.0006 < Ca < 0.04$ 的时候，产生弹状流。

Yu 等^[83]模拟发现当毛细管数 Ca 达到一定值后 ($Ca > 0.03$)，气

泡的生成由剪切力主导，这个时候生成的气泡接近于管道的宽度，甚至比管道的宽度要小。而 $Ca < 0.01$ 的时候，生成弹状气泡，由积压机理产生（详细见 4.3.1.2）。

图 4-42 显示了泡状流区内气泡的生成过程，该区域内气体头没有回缩过程，生成的气泡脱离后，气体头又开始膨胀，在高剪切力以及液体动量下，完成下一轮夹断破裂过程。图 4-43 显示了操作参数对气泡生成尺寸的影响。从图 4-42 及图 4-43a 可以看出，生成气泡的尺寸随着液体流量的增加而减小。表 4-3 列出了不同操作条件下生成气泡的尺寸。从表 4-3 可以看出，生成气泡的尺寸随着气体流量的增大而增大。图 4-43b-c 表明，气泡尺寸随着连续相粘度的增加而减小，随着表面张力的增大而增大。

一些研究者提出了泡状气泡生成模型，并认为生成过程由粘性力和表面张力控制。

Umbanhowar 等^[86]实验发现，生成液滴的尺寸与分散相引入管的直径、两相流量和粘度、两相之间的界面张力等有关。他们认为滴状区发生在毛细管压力远大于惯性力的情况下，利用液滴脱离时刻表面张力与粘性曳力平衡原则（忽略浮力、拉普拉斯压力、动量传递项，因为这些值很小），当分散相流量比较小的时候，得到： $d/w_d \approx 1 + 1/3Ca$ 。

Hua 等^[92]也用数值模拟的方法研究了液滴的生成，并认为液滴生成过程由粘性曳力和表面张力控制，在滴状区，液滴的体积可以预测： $d \propto Ca_c^{-1/2} Re_c^{-1/6}$ 。

Xu 等^[93]认为，在滴状区，液滴夹断由粘性力和表面张力控制，而惯性力、浮力以及动量可以忽略。在分散相头部被夹断脱离时刻，两力达到平衡。并根据修正后的表面张力值以及由两相表观速度表示的粘性力值得到了生成液滴尺寸的表达式： $d/w_d = \sqrt{k\sigma/\mu_c(\bar{u}_c - \bar{u}_d)}$ 。其中 k 是一个常数，与引入分散相管道的润湿性、微通道的限制度（degree of confinement）、表面活性剂的分布情况以及 Marangoni 效应有关。 $\bar{u}_c = 4Q_c/\pi(w_o^2 - d^2)$ ， $\bar{u}_d = 4Q_d/\pi d^2$ ，是分散相头部周围的连续相的速度以及内部分散相的速度。从这个关系式可以得到，生成液滴的尺寸与毛细管数的关系为： $d/w_d \propto Ca^{-1/2}$ 。

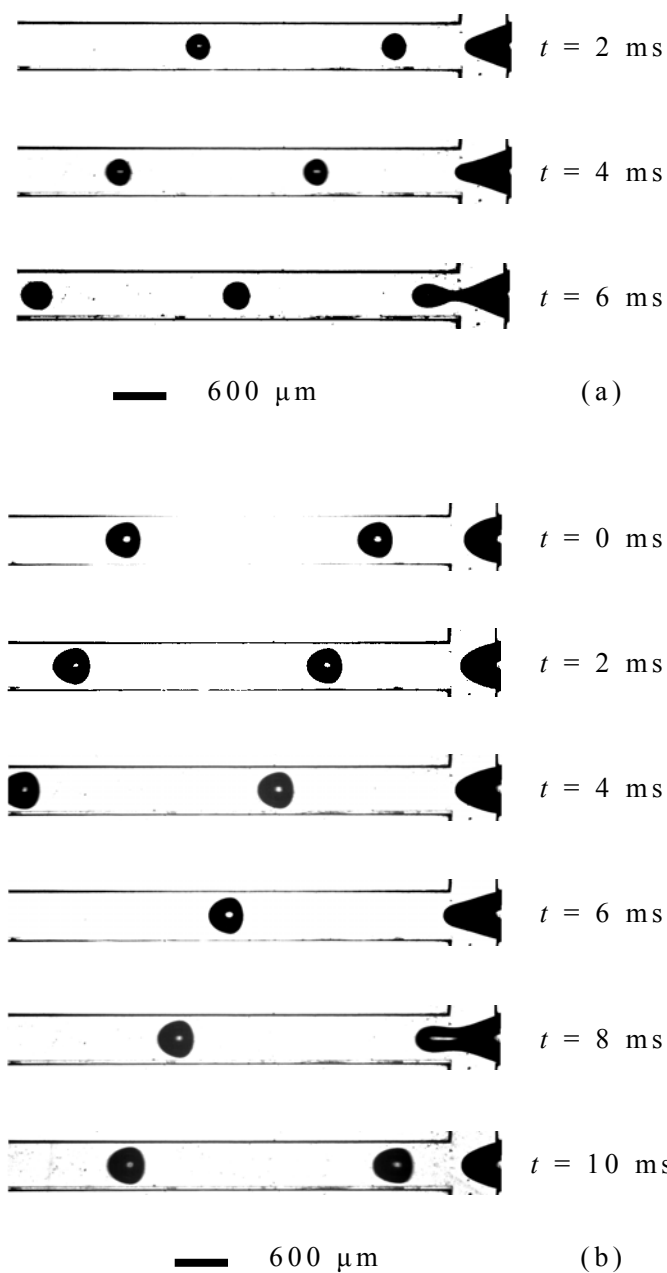


图 4-42 泡状区气泡生成序列图

Fig. 4-42 Micrographs of the bubble formation in the bubbly regime. Gas phase: N_2 , $Q_g = 1200 \mu\text{L}/\text{min}$; liquid phase: 0.5 wt% SDS -62 wt%Glycerol-water mixture. (a) $Q_l = 8400 \mu\text{L}/\text{min}$. (b) $Q_l = 6000 \mu\text{L}/\text{min}$

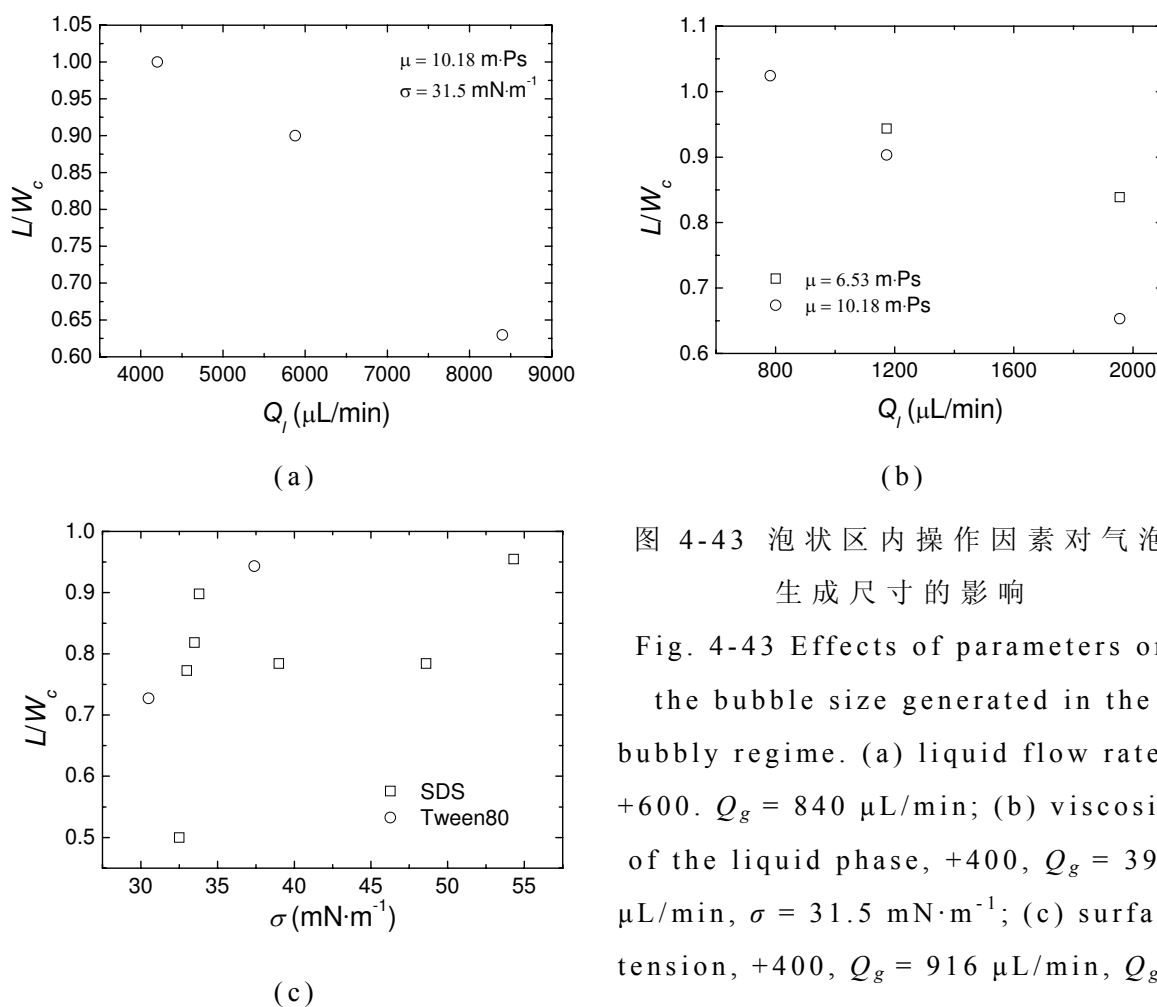


图 4-43 泡状区内操作因素对气泡生成尺寸的影响

Fig. 4-43 Effects of parameters on the bubble size generated in the bubbly regime. (a) liquid flow rates, +600. $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) viscosity of the liquid phase, +400, $Q_g = 390 \mu\text{L}/\text{min}$, $\sigma = 31.5 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$; (c) surface tension, +400, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_g = 10000 \mu\text{L}/\text{min}$

表 4-3 泡状区内不同操作条件下生成气泡的尺寸对比

Table 4-3 Bubble size in the bubbly regime under different conditions

Device	Liquid	μ ($\text{mPa}\cdot\text{s}$)	σ ($\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$)	Q_g ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Q_l ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Ca	L/W_c
+600	62 wt% glycerol	10.18	31.5	840	8400	0.13	0.63
+600	62 wt% glycerol	10.18	31.5	1200	8400	0.13	0.91
+400	0.1 wt% SDS	0.92	39	573	3000	0.01	0.80
+400	0.1 wt% SDS	0.92	39	840	3000	0.01	1.02
+400	50 wt% glycerol	6.53	31.5	1200	4800	0.10	0.78
+400	62 wt% glycerol	10.18	31.5	1200	4800	0.16	0.44

本实验也发现生成气泡的尺寸与连续相流体在气泡生成周围流体的毛细管数成指数关系，得到的指数为 -0.23 (图 4-44)，气泡

尺寸随 Ca 的减小速度要比前面提到的研究者得到的减小速度要小，这可能是由于局部剪切力对气泡生成的尺寸有很大的影响，而本文采用的局部毛细管数是气泡尺寸最大时候的值。也有可能是文献中所用的分散相引入管比主通道要小很多，这样分散相与连续相流体互相影响不是很大，而本文所用的尺寸一样，这样微通道对气泡也有一定的影响。

$$L/W_c = 1.23Ca_c^{-0.23} \quad (4-23)$$

其中 $Ca_c = \sigma/\mu_c(\bar{u}_c - \bar{u}_d)$ ，各平均速度同 Xu^[93] 等的定义。

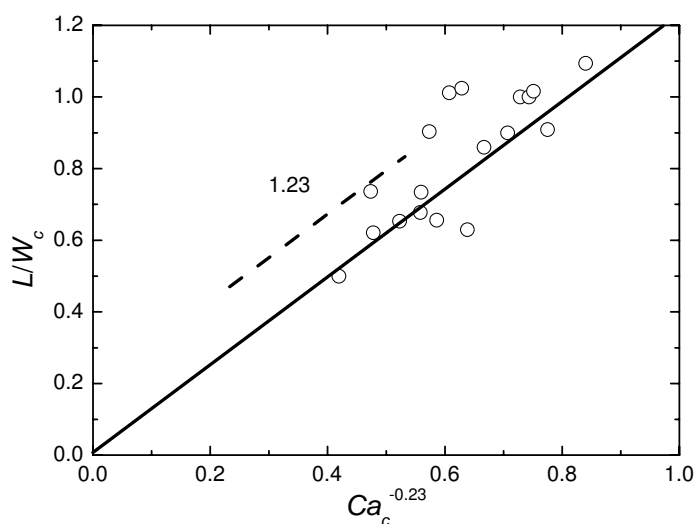


图 4-44 泡状区内生成的气泡尺寸与毛细管数的关系

Fig. 4-44 Relationship between bubble size and capillary number in the bubbly regime

4.3.1.4 结论

本节利用高速摄像机和 micro-PIV 研究了尺寸为 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 和 $400 \times 400 \mu\text{m}$ 微米的聚焦流十字型微通道内气泡的生成过程，深入研究了弹状气泡的夹断及破裂脱离机理。实验观察到三种类型的气泡：弹状气泡、孤立小气泡、卫星气泡。用气液表观流量为坐标绘制了流型图。

弹状气泡尺寸随着液体流量和粘度的增大而减小，随着气体流量和管道宽度的增大而增大。在实验基础上，提出一个基于气液流量比和液体雷诺数的气泡尺寸预测式，该内容拓展了其他研究者的工作^[56-58, 76, 80]。结果表明惯性力作用对气泡生成尺寸起重要作用。

弹状气泡形成过程可以分为三个阶段：膨胀阶段、夹断阶段和脱离阶段。膨胀之前有一段等待时间。气泡生成过程主要由夹断阶段控制，而夹断速率和夹断时间受气液流量和液体粘度影响。这些结果与其他研究者得到的结果吻合^[76, 80]。第三种聚焦流十字型微通道内弹状气泡的夹断速度比经典毛细作用夹断原理计算值要小至少一个数量级。这也符合逻辑，因为表面张力对微通道内气泡生成过程没有影响。液体对气体头的拉伸和剪切作用是其夹断破裂脱离的主要控制力，而不是毛细不稳定作用。关于拉伸力以及剪切力对气泡生成过程的影响，需要更进一步的研究：考察管壁、通道截面形状、通道尺寸等的影响。提出了一个基于无量纲数的夹断速度和夹断时间的关联式。

弹状气泡生成过程的脱离阶段，气体头颈部的最小宽度与剩余时间呈指数关系，可以关联为： $W_m = 18.62\phi^{-0.15}(T-t)^{1/3}$ 。

泡状区内生成的气泡尺寸随连续相流体流量和粘度的增大而减小，随表面张力和气体流量的增大而增大。生成气泡的尺寸与修正的毛细管数（局部毛细管数）的关系为 $L/W_c = 1.23Ca_c^{-0.23}$ 。

本节定量研究了第三种聚焦流十字型微通道内“完全受限”的弹状气泡和由剪切力为机理生成的孤立小气泡的生成过程，为进一步的实验、模拟和理论研究打下了基础^[136, 137]，能为微尺度内化工过程的工业化应用提供设计依据和理论指导。

4.3.2 非牛顿流体中气泡的生成

4.3.2.1 气泡生成类型

聚焦流十字型微通道内氮气—PAAm 溶液两相流的流型可以分为：弹状流（slug bubble flow）、导弹流（missile bubble flow）、环状流（annular flow）、间歇流（intermittent flow）（图 4-45）。弹状流发生在较低的液体流速情况下。随着液体流速的增大，可以观测到导弹流，这种流区下气泡的宽度比管道要窄，两头呈现子弹型，

而且被流体拉得很长。流速继续增大，观测到环状流。

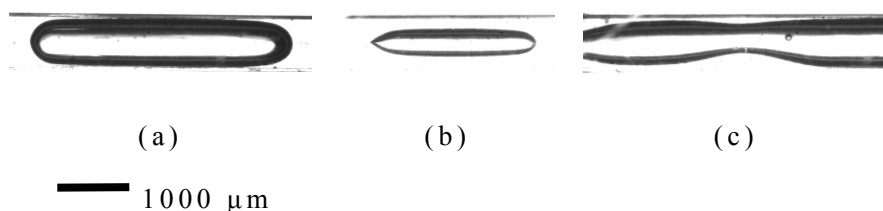


图 4-45 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 微通道内氮气—1 wt% PAAm 溶液两相流流型
 Fig. 4-45 Flow patterns observed in $600 \times 600 \mu\text{m}$ microfluidic device for 1.00 wt% PAAm solution: (a) slug bubble flow, $Q_l = 30 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) missile bubble flow, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$; (c) annular flow, $Q_l = 10 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_g = 8147 \mu\text{L}/\text{min}$

定义了两个流型区域：稳定流区和不稳定流区。稳定流区包括：均一产生的弹状气泡和导弹气泡；环状流。不稳定流区内产生的气泡为不均匀的。

通常，流型图受操作参数如气液流速、管道尺寸以及流体性质等的影响。图 4-46 显示了 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 微通道内氮气—1% PAAm 溶液两相流在不同流速下的流型图和流型转变线。气液两相流的雷诺数分别为横纵坐标。对于液体来说，雷诺数定义为： $Re_l = \rho u^{2-n} d^n / K$ ；气体的雷诺数为： $Re_g = \rho u d / \mu$ 。氮气的参数为： $\rho = 1.25 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ， $\mu = 0.017 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ （ 20°C ，大气压）。气液雷诺数范围为： $10^{-5} < Re_l < 10^2$ ； $10^{-4} < Re_g < 10^{-1}$ 。

不同装置内氮气在不同浓度 PAAm 溶液中的稳定和不稳定流区的转变线趋势是一致的，如图 4-47 示。转变线随着 PAAm 溶液浓度的增大而向下移动。在相同的剪切速率情况下，PAAm 溶液浓度越高，剪切应力和粘度也越大，流体也变得更溶液扰乱均匀气泡的生成，所以在较低的液体流速情况下出现不稳定流区。流型转变线随着管道尺寸的减小而向下移动。

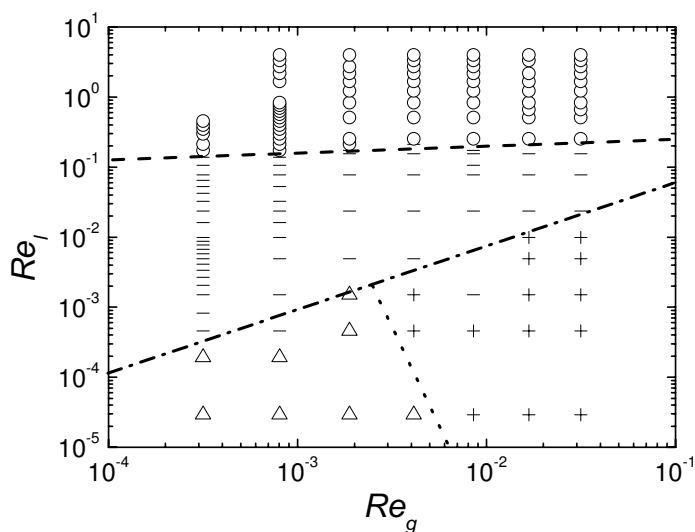


图 4-46 600 × 600 μm 微通道内氮气—1 wt%PAAm 溶液两相流流型图

Fig. 4-46 Flow patterns map and transition lines in 600 × 600 μm microfluidic device for 1.00 wt% PAAm solution: (△) slug; (—) missile; (○) intermittent; (+) annular

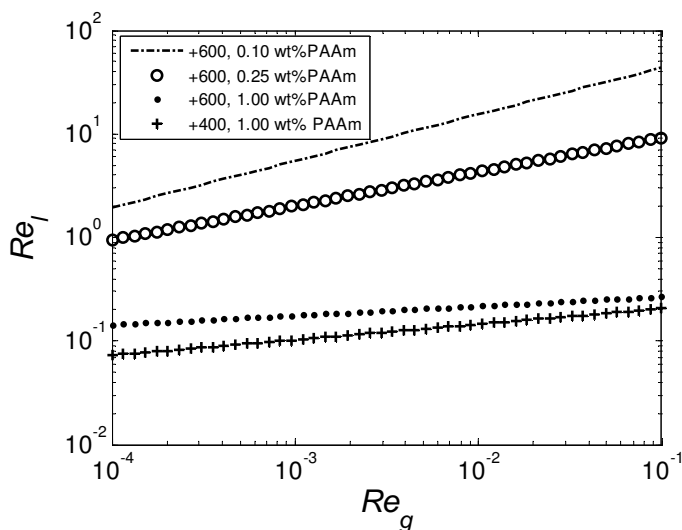


图 4-47 管道尺寸和 PAAm 溶液浓度对流型转变线的影响

Fig. 4-47 Effects of channel size and concentrations of PAAm solution on the transition line

稳定和不稳定流区的流型转变线上的气液雷诺数可以用一个简单的表达式表示：

$$Re_l = \alpha Re_g^\beta \tag{4-24}$$

不同管道尺寸内不同浓度的 PAAm 溶液内的参数值 α 和 β 见表 4-4。

表 4-4 式 4-24 中的 α and β 值

Table 4-4 Values of α and β in Eq. 4-24

Channel size (μm)	Concentration of PAAm (%)	α	β
600	0.10	122.61	0.45
600	0.25	19.67	0.33
600	0.50	11.14	0.34
600	0.75	4.35	0.34
600	1.00	0.33	0.09
400	0.10	112.97	0.48
400	0.25	54.94	0.46
400	0.50	7.86	0.30
400	0.75	1.84	0.28
400	1.00	0.29	0.15

4.3.2.2 气泡生成过程

图 4-48 显示了非牛顿流体中弹状气泡和导弹气泡的生成过程。气泡的生成过程可以大致分为三个阶段：膨胀、夹断和脱离阶段。在膨胀阶段，气体头细丝主要在径向方向上膨胀直到其宽大达到最大值。接着气体头细丝经历夹断阶段：气体头细丝在轴向方向上向下游发展、宽度在径向方向上收缩。当气体头细丝颈部形成后，聚焦流体以较快的速度夹断细丝并使之脱离。气体头细丝的形状为鸡冠形：由轴向方向的尖头和径向方向的两侧“耳朵”构成。两侧“耳朵”附着在两液体引入管接近气体管道一侧的壁面上。正如图 4-48 所示，导弹气泡形成过程中气体头细丝顶部要比弹状气泡形成过程中的更尖。生成气泡尾部呈现尖状，这个现象对导弹气泡更明显。这种现象与大柱体内非牛顿流体中气泡的生成现象类似^[138]。这种尖状现象归因于非牛顿流体 PAAm 溶液的剪切变稀特性。

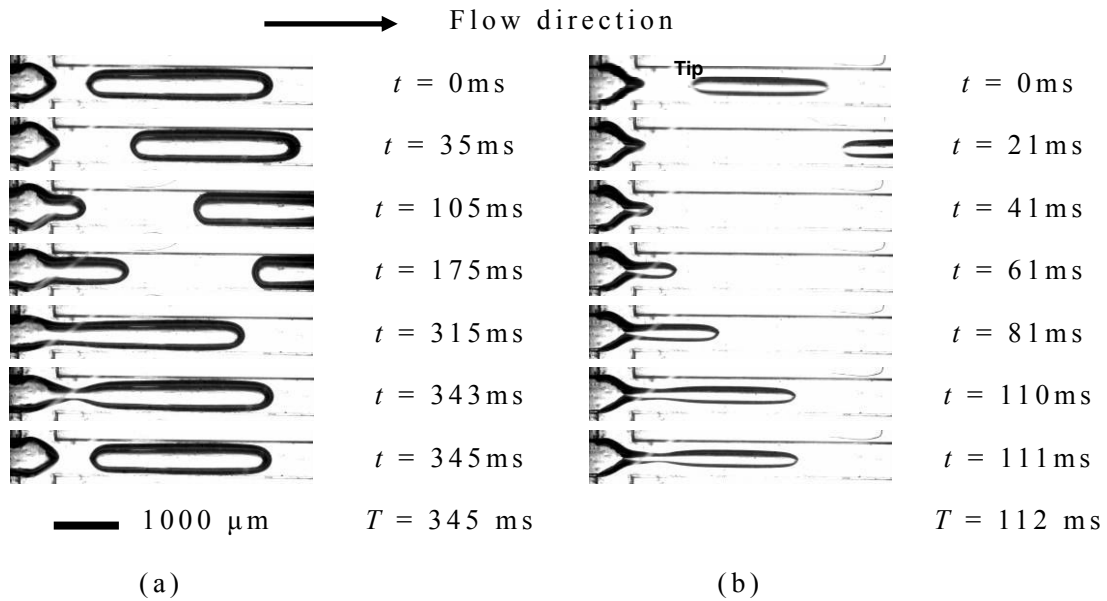


图 4-48 $600\ \mu\text{m} \times 600\ \mu\text{m}$ 微通道内气泡在 PAAM 溶液中生成过程系列图

Fig. 4-48 Optical micrographs of the evolution of the periodic bubble formation process. Gas phase: N_2 ; Liquid phase: 0.25 wt% PAAM aqueous solution, $600\ \mu\text{m} \times 600\ \mu\text{m}$ microfluidic device, $Q_g = 154\ \mu\text{L}/\text{min}$, (a) $Q_l = 220\ \mu\text{L}/\text{min}$; (b) $Q_l = 2200\ \mu\text{L}/\text{min}$

图 4-49 显示了导弹气泡在 1.25 wt % PAAM 溶液中生成的一个周期内气体头细丝周围不同深度流场的实时测量结果，气液流速分别为 $Q_g = 154\ \mu\text{L}/\text{min}$ ， $Q_l = 70\ \mu\text{L}/\text{min}$ 。0、-100、-200、-260 μm 分别表示管道竖直方向的深度值，取最中间层为 0，中间层向下方向为负。当 $t/T = 1/15$ 时，气体细丝主要在轴向发展，气液流体基本不彼此影响。当 $t/T = 4/15$ 时，为膨胀阶段，气体头细丝在径向方向略微发展，发展到主通道内的气体头阻塞了流体，所以气体头细丝颈部的流体速度明显下降。当 $t/T = 7/15$ 和 $9/15$ 时，气体头细丝发展进入夹断阶段，径向方向的速度控制夹断过程。在高液速情况下，形成一个可见的颈部。当 $t/T = 14/15$ 时，气体头细丝颈部以一相对较高的速度夹断破裂并最终脱离。不论气体头细丝发展过程中的哪个阶段，其周围的非牛顿流体内流场在下游方向侧出现漩涡。而且漩涡自管道中间层向管壁发展，所以离上下管壁越近，漩涡越大（图 4-57e-f）。液体在管道壁面受阻，其中一部分的液体由于其弹性特性被壁面反弹回，形成漩涡。

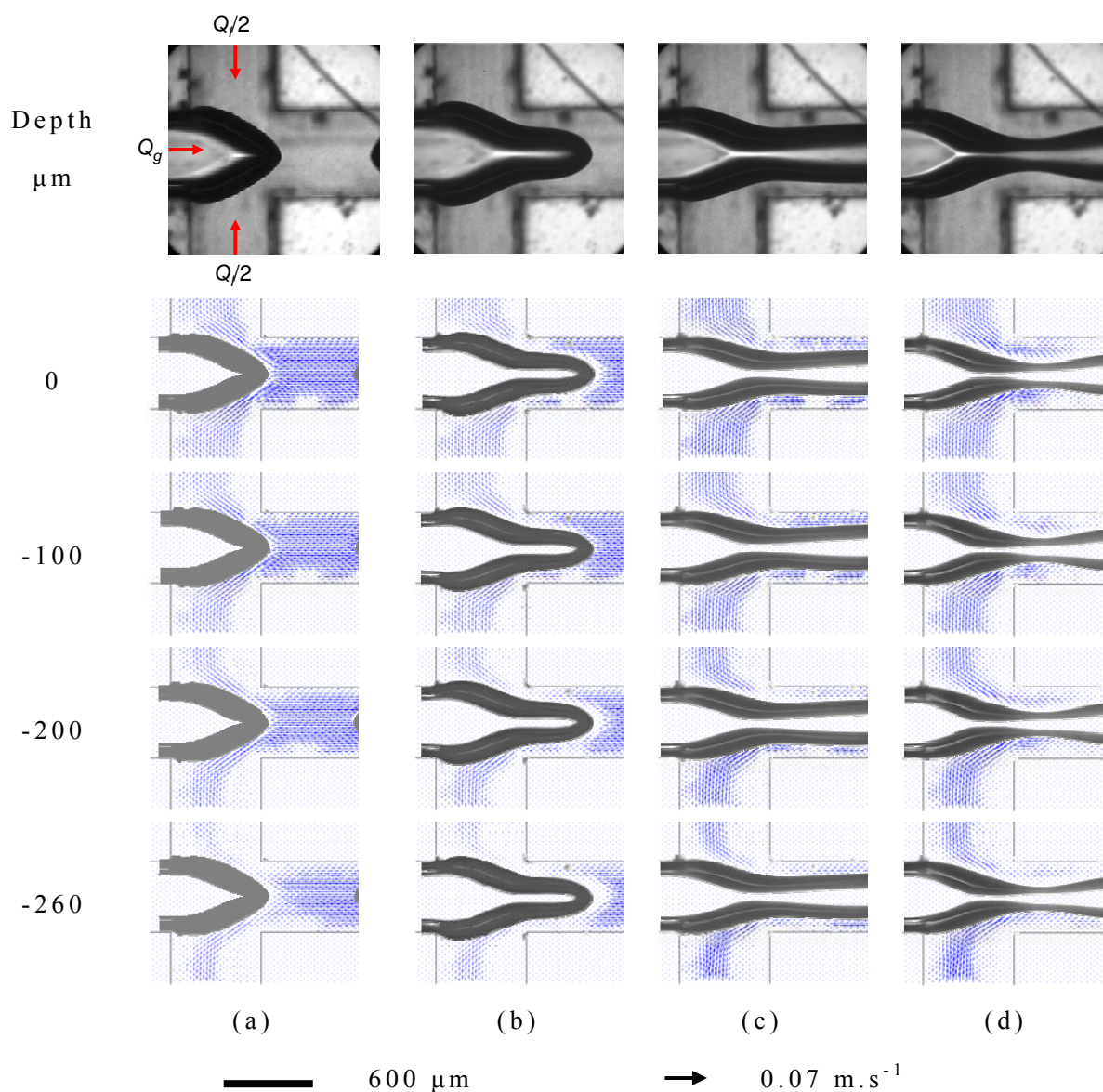


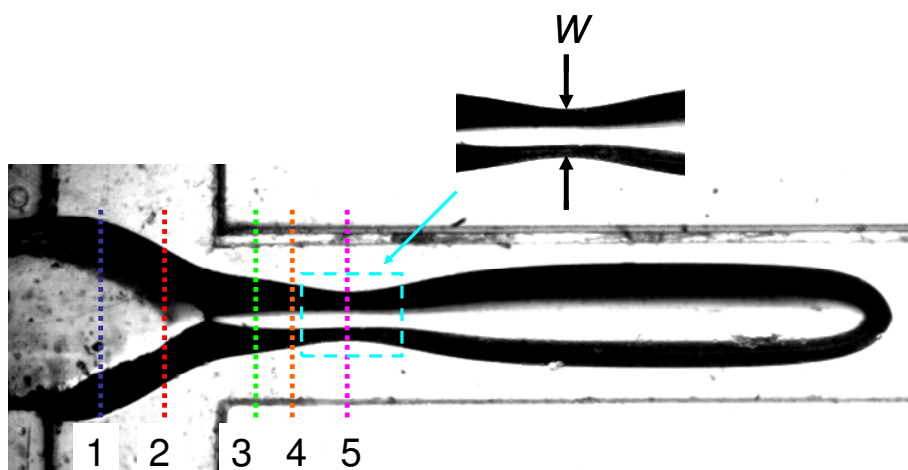
图 4-49 气泡在 PAAm 溶液中生成过程中周围流场变化图

Fig. 4-49 Velocity fields in the continuous flow during one period of a bubble formation. $600\ \mu\text{m} \times 600\ \mu\text{m}$ microfluidic device. Gas phase: N_2 , $Q_g = 154\ \mu\text{L}/\text{min}$; liquid phase: 1.25 wt % PAAm aqueous solution, $Q_l = 70\ \mu\text{L}/\text{min}$. (a) $t/T = 1/15$, $L_t/W_c = 1.07$, $W_t/W_c = 1.17$; (b) $t/T = 4/15$, $L_t/W_c = 1.83$, $W_t/W_c = 1.27$, $W_n/W_c = 0.70$; (c) $t/T = 7/15$, $W_t/W_c = 1.13$, $W_n/W_c = 0.67$; (d) $t/T = 14/15$, $W_t/W_c = 1.03$, $W_n/W_c = 0.33$

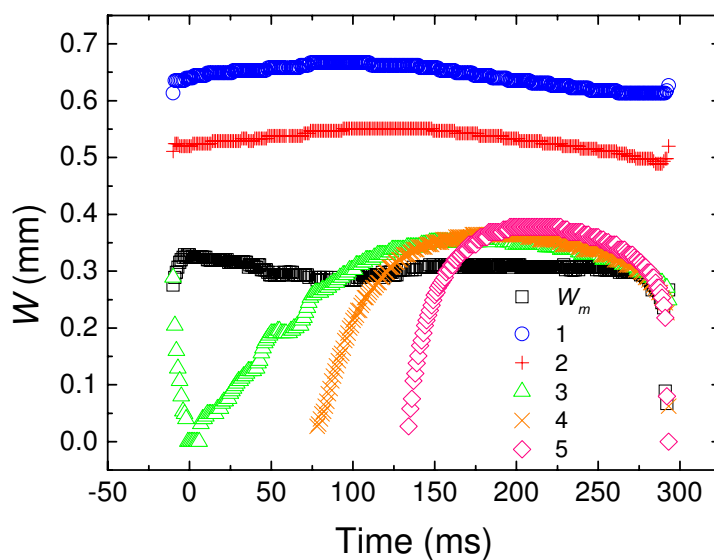
4.3.2.3 气泡生成机理

导弹气泡的气体头细丝发展过程中颈部宽度的演变过程见图 4-50。气体头细丝宽度在图中标出的位置 1-5 (虚线) 上测量结果见图 4-50b。在十字型交口 (位置 1 和 2), 气体头细丝在径向方向变化范围仅为 0.05 mm。气体头细丝主要在径向方向发展 (位置 3-5), 在某一时间后, 形成一个颈部。气体头细丝在开始夹断过程之前, 一直在轴向方向上发展。当气体头细丝顶端距离超过其周长的时候, 开始变得不稳定, 历经夹断脱离并最后破裂形成气泡^[139]。当气体头细丝最终被夹断脱离后, 细丝由于气液界面张力而回缩, 如图 4-50 中位置 3 的演变过程前部分逐渐变小情况。气体头细丝在位置 4 和 5 的演变过程非常类似。由于位置 5 就是气体头细丝夹断并最后脱离的位置, 所以其夹断速度较位置 4 上的要大。气体头细丝颈部的演变过程是气泡生成过程机理研究的一个很好的衡量指标, 所以, 图 4-51 给出了气体头颈部最大及最小宽度 W_m (分别为膨胀阶段和夹断阶段) 的演变过程。

导弹气泡的生成过程在前面提到的三个阶段的基础上还多了一个阶段即拉伸阶段 (stretching stage), 所以导弹气泡的典型生成过程可以分为四个阶段 (图 4-51a-g): 膨胀阶段、拉伸阶段、夹断以及脱离阶段。膨胀阶段 (图 4-51a-b), 夹断阶段 (图 4-51d-e) 和脱离阶段 (图 4-51f-g) 与弹状气泡形成过程中的类似^[82]。拉伸阶段 (图 4-51c) 导弹气泡生成过程中的特殊现象: 气体头细丝只在轴向方向发展, 而保持径向方向的宽度。这种现象归因于 PAAm 溶液的剪切变稀特性, 延迟了气体头细丝的夹断以及脱离过程。剪切速率在径向方向不同, 所以气体头细丝周围流体的粘度随径向方向的不同而变化。这个推论用 micro-PIV 测量的速度场得到了验证, 具体结果见后面论述。而由于 Plateau-Rayleigh 不稳定性作用, 气体头细丝开始夹断并最后破裂脱离。



(a)



(b)

图 4-50 气体头细丝颈部宽度与位置的关系

Fig. 4-50 Position dependence of the measurement. (a) Gaseous thread width $W(t)$ measured at different locations in the microchannel. Measurements were performed at position designated as 1, 2, 3, 4 and 5 (Dashed lines). Position 5 is the location at which the neck of the thread experienced its minimum, as plotted in the figure; (b) the gaseous thread thickness measured at different positions. Data were color coded according to (a). Gas phase: N_2 ; liquid phase: 0.25 wt% PAAM solution, $Q_g = 390 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 960 \mu\text{L}/\text{min}$, $600 \times 600 \mu\text{m}$ microfluidic device. The time zero was settled as the moment of the gaseous thread pinches-off

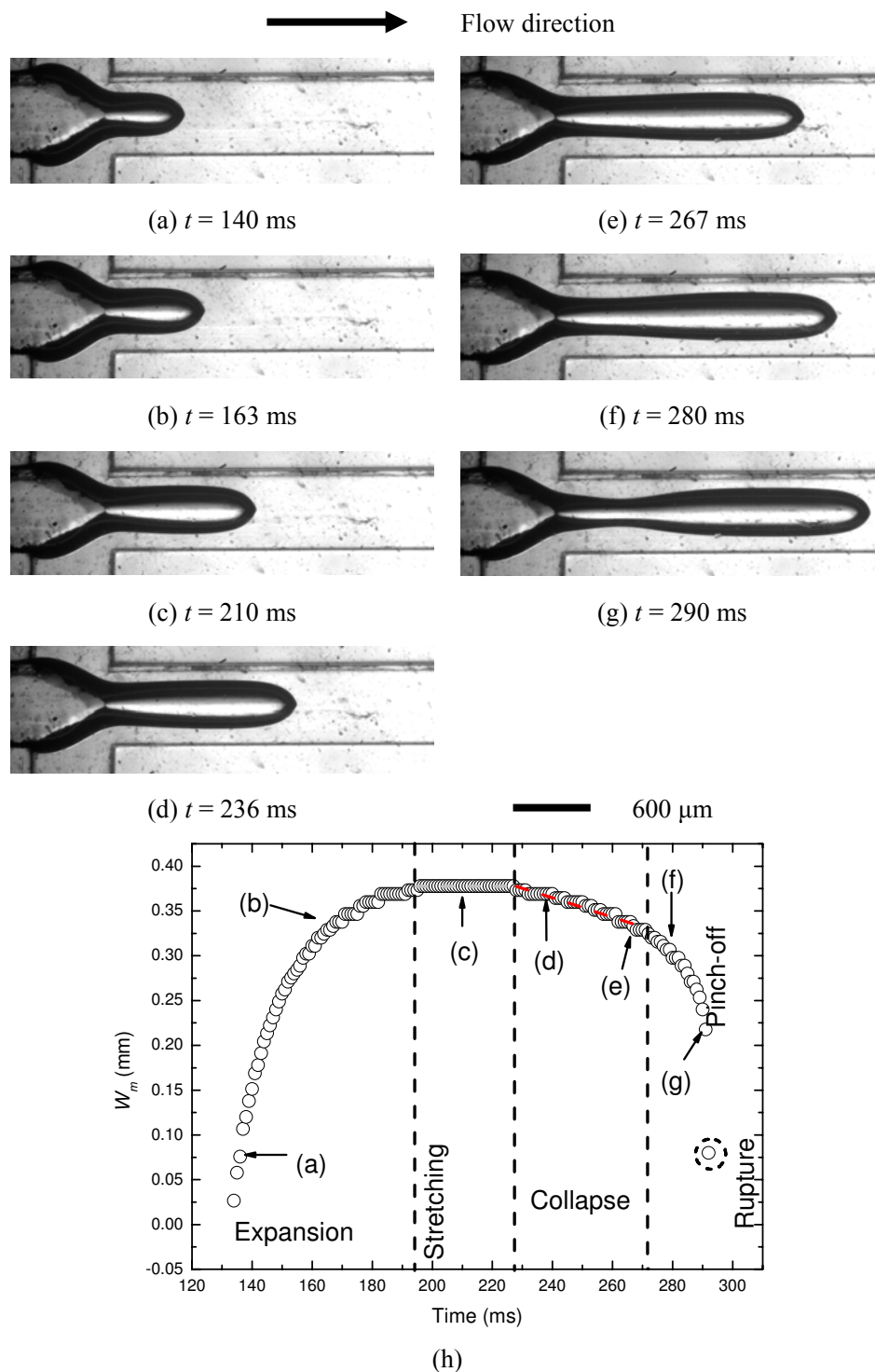


图 4-51 导弹气泡生成过程中气体头细丝颈部最小距离的演变图

Fig. 4-51 (a) – (g) Optical micrographs of the evolution of the periodic bubble formation process; (h) temporal evolution of the minimum width of the gaseous thread during the formation process. Gas phase:

N_2 ; liquid phase: 0.25 wt% PAAm solution, $Q_g = 390 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 960 \mu\text{L}/\text{min}$, $600 \times 600 \mu\text{m}$ microfluidic device

气体头细丝宽度的最大或者最小距离 $W_m(t)$ 的演变过程见图 4-51h。 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 微通道内氮气气泡在 0.25 wt% PAAM 溶液中生成，气液流速分别为 $Q_g = 390 \mu\text{L}/\text{min}$ ， $Q_l = 960 \mu\text{L}/\text{min}$ 。整个生成周期为 303 ms，膨胀时间为 206 ms，拉伸时间为 32 ms，夹断时间为 44 ms，夹断脱离时间为 21 ms。

图 4-52 显示了与图 4-51 对应条件下夹断阶段以及脱离阶段气泡头细丝颈部宽度与时间之间的缩放率。在夹断阶段，气体头颈部几乎以一恒定的速度 $0.0011 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 减小。这个现象与聚焦流十字型微通道内弹状气泡在牛顿流体中夹断过程的夹断速度类似^[57]。因为连续相流体的粘度影响夹断速度^[82]，PAAM 溶液的剪切变稀特性也影响气体头细丝的夹断过程，如图 4-52a。在一个较短的时间内 (3-9 ms)，气体头细丝宽度维持在同一值，然后继续减小。流动连续相流体在轴向方向上拉伸气体头延伸，而在径向方向上挤压气体头细丝颈部。也就是说，流体对气体头细丝外延力先在轴向方向起作用，接着是在径向方向上起作用。

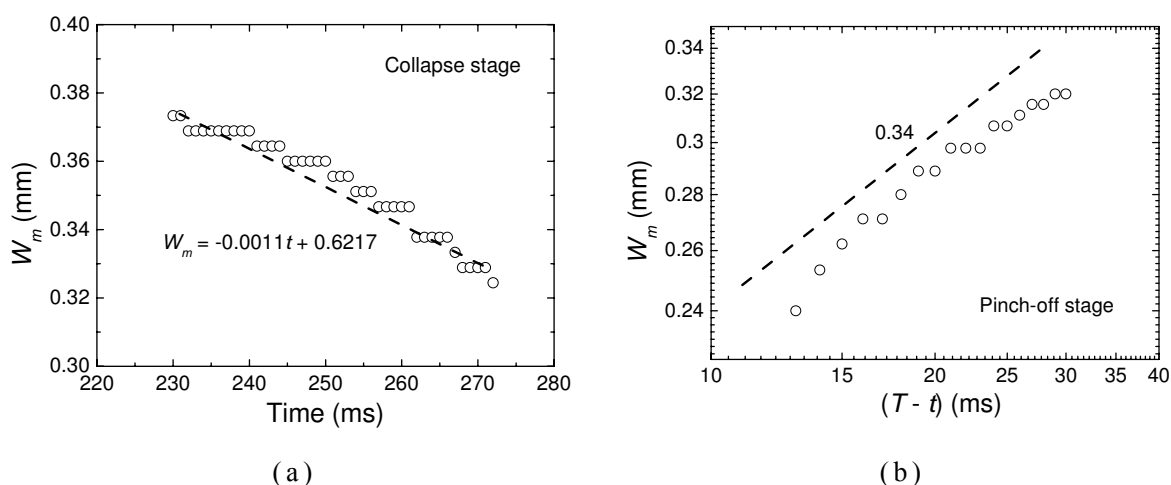


图 4-52 夹断和脱离阶段细丝宽度的缩放规律

Fig. 4-52 Scaling law for the width of the gaseous thread during the collapse and pinch-off stages: (a) the collapse stage; (b) the pinch-off stage

在夹断脱离阶段 (图 4-52b)，气体头颈部的最小宽度 W_m 与剩余时间 $(T-t)$ 之间的关系为 $W_m \propto (T-t)^{0.33+0.01}$ 。这个相似率与聚焦流十字型微通道内弹状气泡在牛顿流体中的形成过程中的相似率类似^[56, 120]。这个相似率也表明了夹断脱离阶段是不稳定的过程，主要由

气液两相的惯性力控制。但两者之间也有区别，在牛顿流体中，当气体头细丝的宽度小于或者等于管道宽度的时候，开始出现 3D 不稳定的夹断脱离过程；而对于本实验的非牛顿流体而言，气体头颈部的宽度始终是小于管道的宽度的，但是它还是经历了 2D 稳定的夹断过程。这个现象也说明了 PAAm 溶液的剪切变稀特性影响气体头颈部夹断及夹断脱离过程之间的转变条件。上图的条件中，两个过程的转变发生在 $W_m = 0.32 \text{ mm}$ 。

气泡在非牛顿流体中生成过程几乎没有等待阶段，这种现象与弹状气泡在牛顿流体中生成过程不同^[83, 120]。脱离阶段结束后，气体头细丝在十字型交口回缩一小短距离，其二维形状通常为抛物线型。而在牛顿流体中，其二维形状通常为圆形。

从上面的分析得知，气体头细丝周围流体的剪切变稀特性影响气泡生成过程的膨胀、拉伸和夹断阶段，但是对夹断脱离阶段没有影响。由于剪切变稀的特性，相比在牛顿流体中的情况，气体头细丝在非牛顿流体中更容易在轴向方向被拉伸（图 4-53），而在径向方向上收缩。

对于微通道内低粘度弹性的高分子微液滴的生成过程，生成液滴之间有变细的细丝生成，这表明低雷诺数情况下弹性力对液滴生成过程有影响^[66]。Husny 等^[66]观测到细丝变细动态过程中两个特征区域：预伸展区（pre-stretch region）和指数自缩小区（exponential self-thinning region）。

Arratia 等^[140]研究了弹性力对高聚物流体头部变细和夹断过程的影响。在流体细丝头部发展初期，黏弹性可以忽略，其演变过程被拖延得很慢。经过一段时间后，流体头的颈部变得很长，细丝被拉长，夹断速率相比牛顿流体中情况要慢很多。他们将高聚物流体头部发展过程分为两个区域：流体驱动区域（flow-driven）和毛细作用驱动区域（capillary-driven）。在初期，流体头部由流体控制，细丝变细呈指数发展；后期，流体先跃到第二流体控制区，此时细丝内的黏弹应力变得很重要并延迟了指数缩小过程。最后，高聚物细丝头部变细过程由毛细作用控制，并呈线性缩小。

Edmond 等^[141]研究了聚焦流微通道内黏弹性流体头部的生长过程，并发现流体的弹性及延伸流变性质对流体头部的稳定性起重要作用。只改变剪切粘度并不能改变稳定流型图。增加聚合物的浓度，其弹性增强，使稳定的液体头区域变宽。并提出了一个基于毛

细应力与延伸和剪切应力平衡的相似率来预测稳定流型图。

图 4-53 显示了气体头细丝顶端位置及速度的演变过程。在第一阶段，气体头细丝的膨胀过程主要由气相控制，其速度受液相流体的影响很少。这个现象与牛顿流体中的现象很类似^[82]。然后，气体头顶端加速，直到达到其最大值，因为气体头延伸到主通道的部分阻挡了部分流体，气液界面之间的压力增加^[82, 100]。与牛顿流体中的气体头细丝顶端持续加速的方式不同的是，非牛顿流体中气体头细丝顶端的速度在 $0.01 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 范围内波动。这个现象也应归因于 PAAm 溶液的剪切变稀特性。气体头细丝顶端向下游延伸，其宽度变窄，而液体的体积流量是一定的，所以轴向的局部流体速度下降，进而使剪切速率下降，使顶端的生长速度变慢。

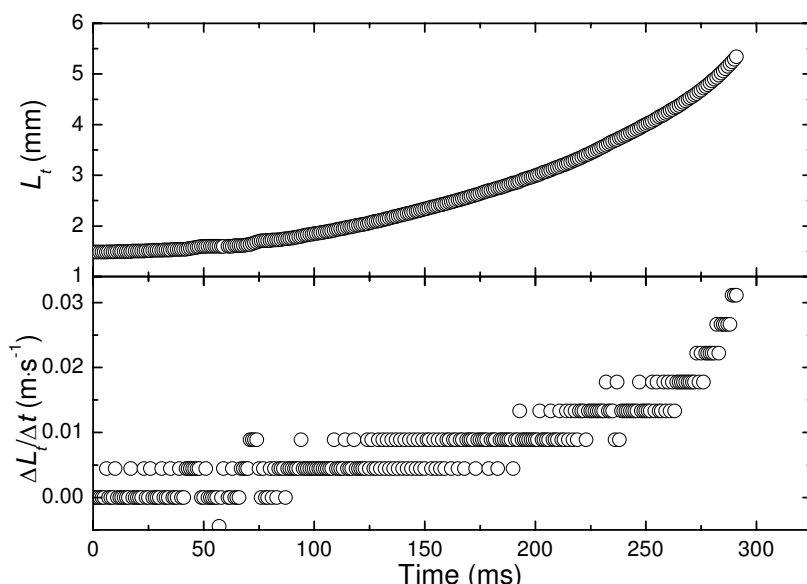


图 4-53 气体头细丝顶端及其速度的演变图

Fig. 4-53 Temporal evolution of the thread tip L_t and its velocity $\Delta L_t/\Delta t$. Gas phase: N_2 ; liquid phase: 0.25 wt% PAAm solution, $Q_g = 390 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 960 \mu\text{L}/\text{min}$

图 4-54 显示了气体头细丝二维面积 A 的无量纲数 $W_c(\Delta A/\Delta t)/Q_l$ (图 4-54 a)、三维体积 V (图 4-54 b) 的实时演变过程。气体头细丝先经历了一个缓慢的加速过程，然后加速度逐渐增加。图 4-54 b 表明气体头细丝与液相相比，占主管道的部分比较小，这说明，非牛顿流体受阻的程度不会像牛顿流体那么大^[70, 82]。

图 4-55 比较了气体头在不同浓度的 PAAm 溶液 (0.10 wt %, 0.50 wt %) 中生成过程的演变过程。PAAm 溶液浓度越高, 生成的气泡的体积越小, 气泡脱离时候的宽度越窄。 W 、 V 分别为气泡头的宽度和体积, 下标 “0” 表示周期开始时的值。

图 4-56 表明气泡脱离宽度随气液流量比的变化而变化。 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 微通道内气泡在 0.25 wt% PAAm 溶液中的生成过程中, 当液气流量比值 Q_l/Q_g 大于一个临界值 1.3 的时候, 气泡的脱离宽度与管道宽度的比值 W_b/W_c 随液气流量比 Q_l/Q_g 的增大而呈非线性减小(图 4-56a); 而当 Q_l/Q_g 小于 1.3 的时候, W_b/W_c 维持在 1。

临界液气流量比 Q_l/Q_g 随气体流量、PAAm 溶液浓度、管道尺寸的变化而变化(图 4-56b)。临界液气流量比 Q_l/Q_g 随着气体流量、PAAm 溶液浓度的增大而减小; 随着管道尺寸的减小而减小。实验发现临界液气流量比和气液雷诺数的关系为:

$$Re_g/Re_l = 0.01(Q_l/Q_g)_c^{-2.1} \quad (4-25)$$

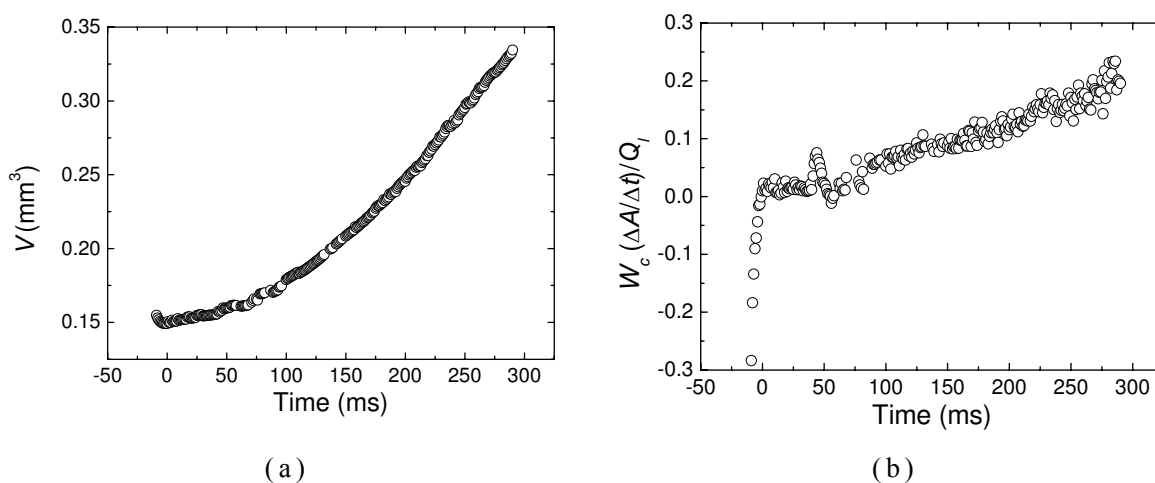


图 4-54 气泡头二维面积及三维体积的演变规律

Fig. 4-54 (a) Temporal evolution of the volume V of the thread; (b) normalized rate evolution of the cross-sectional area A as $W_c(\Delta A/\Delta t)/Q_l$. Gas phase: N_2 ; liquid phase: 0.25 wt% PAAm solution, $Q_g = 390 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 960 \mu\text{L}/\text{min}$

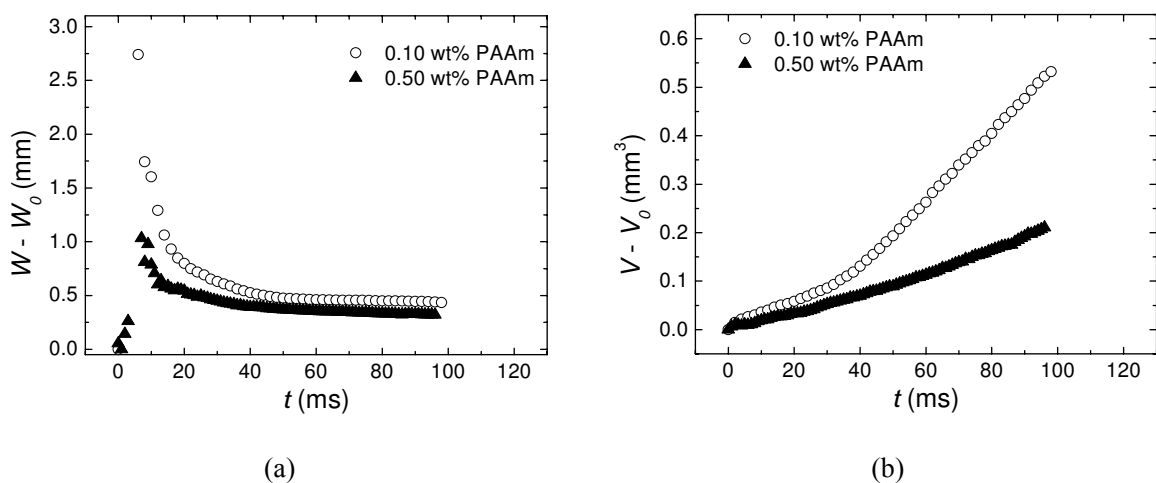


图 4-55 气泡头部在不同浓度 PAAm 溶液中的演变过程比较

Fig. 4-55 Temporal evolution of the gaseous threads in the liquid phases for different concentrations of PAAm solutions. +600, $Q_l = 840 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_g = 840 \mu\text{L}/\text{min}$

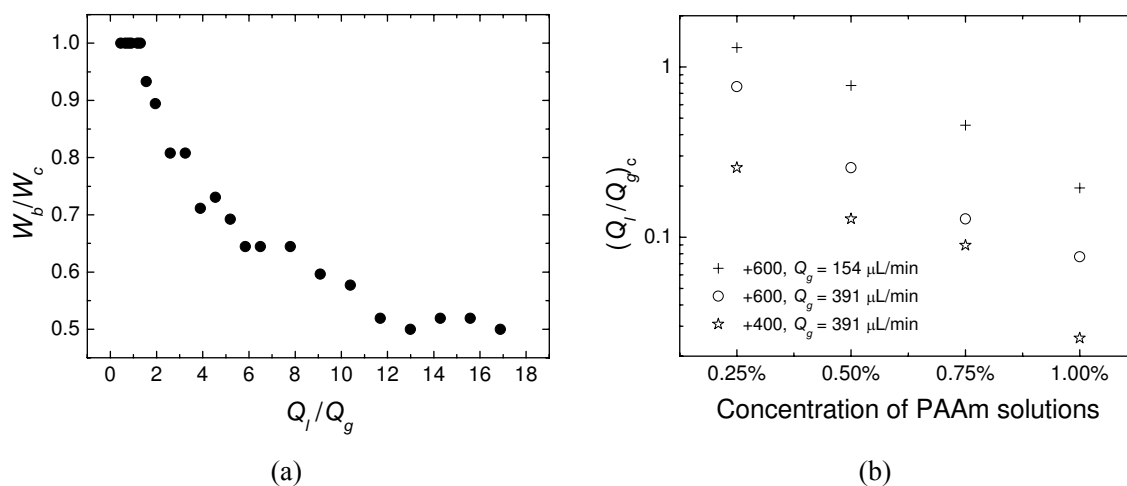


图 4-56 气液流量比对生成气泡宽度影响以及操作条件对临界气液流量比的影响

Fig. 4-56 (a) Effects of the ratio of liquid/gas flow rates on the bubble width. +600, 0.25 wt% PAAm, $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) effects of gas flow rates, concentrations of PAAm solutions and size of microfluidic device on the critical value of the ratio of liquid/gas flow rates

micro-PIV 测量得到的详细定量数据可以用来计算微通道内流体的剪切速率以及粘度的分布（单相流的测量结果见 4.2 节）。图 4-57 显示了与图 4-49 对应的放大图(a-d)、中间层（0 μm ）和离中间层 200 μm 层的流线图(e-f)。图 4-58 为根据图 4-57a 示两特征面流场速度计算的剪切速率和粘度分布。从流线图可以清楚的看出，中间层的漩涡比 200 μm 处的漩涡要小，这可能与矩形截面有关，矩形截面的四个角落很有可能形成循环区域，离角落越近，漩涡越大。图 4-58a-b 显示了与图 4-57a-d 对应的纵向位置 I 的轴向剪切力及粘度的分布图，对应于图 4-57a，可以看出，管壁中间的剪切速率最小，而越接近管道壁面，剪切速率越大，粘度与剪切速率的变化趋势相反。而剪切应力与剪切速率呈指数小于 1 的指数关系，剪切应力随着剪切速率的变大而变大。当剪切应力足够大的时候，气体头细丝向径向传递的时间大于向轴向传递的拉伸时间，所以在轴向方向上被拉长，而其宽度也小于管道的宽度。这也是当液体流量大到一定值的时候，生成的气泡的宽度要小于管道宽度的原因。对于 b-d，可以看出，形成的气体头细丝对流场也产生了影响，气体假设为不可压缩流体，气液表面呈现一定的刚性，可以看成一新的壁面，和管道壁面之间的空间内的流体又呈现新的流型分布，但是剪切力和粘度的变化特征与上述类似。图 4-58c-d 显示了与图 4-57a-d 对应的纵向位置 II 的轴向剪切力及粘度的分布图也大致显示了上面的规律。

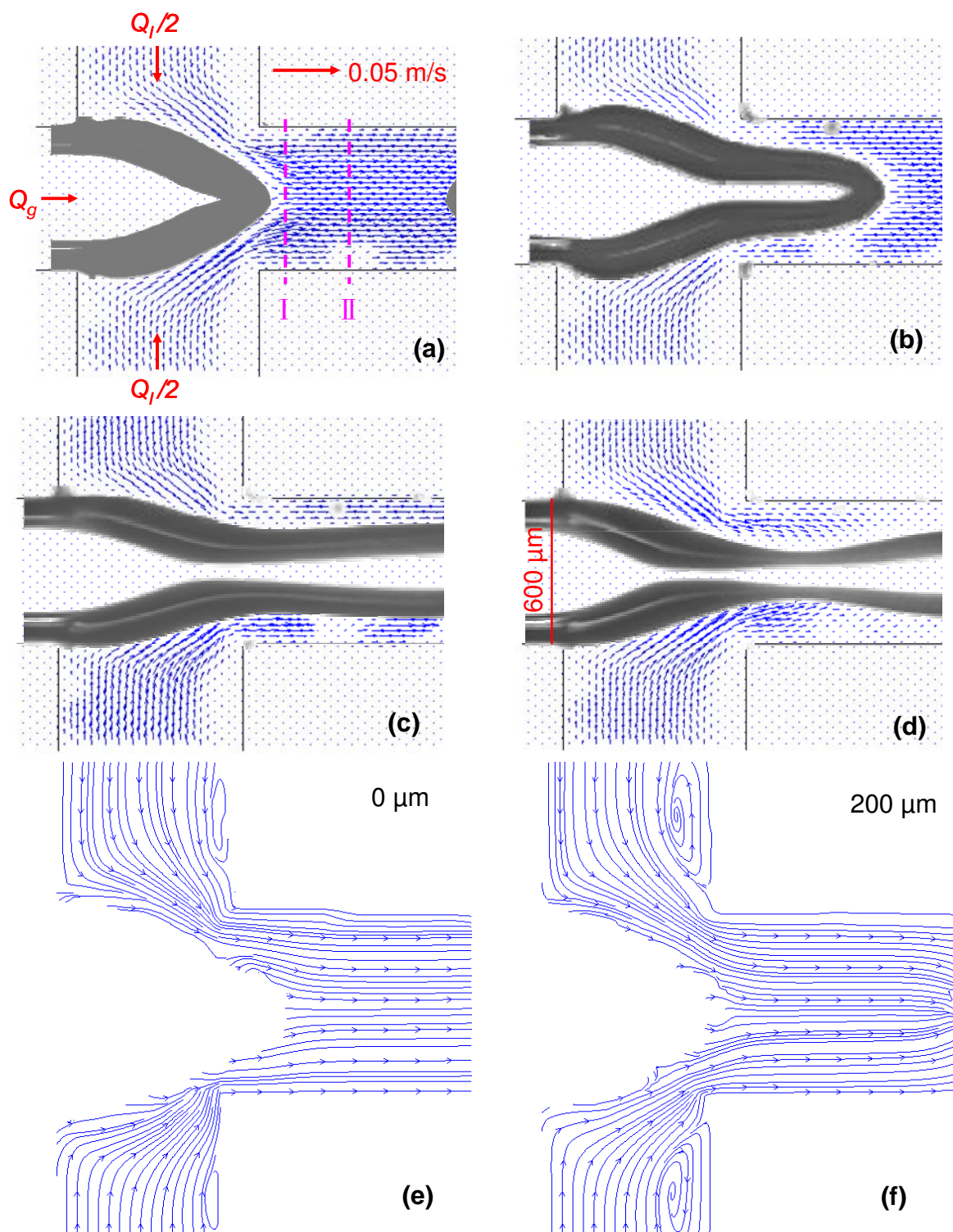


图 4-57 气泡生成过程中气体头细丝周围流场(a-d)及流线图(e-f)

Fig. 4-57 Velocity distribution (a-d) and streamlines (e-f) around the gaseous thread during the bubble formation process. Gas phase: N_2 , $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$; liquid phase: 1.25 wt % PAAm aqueous solution, $Q_l = 70 \mu\text{L}/\text{min}$

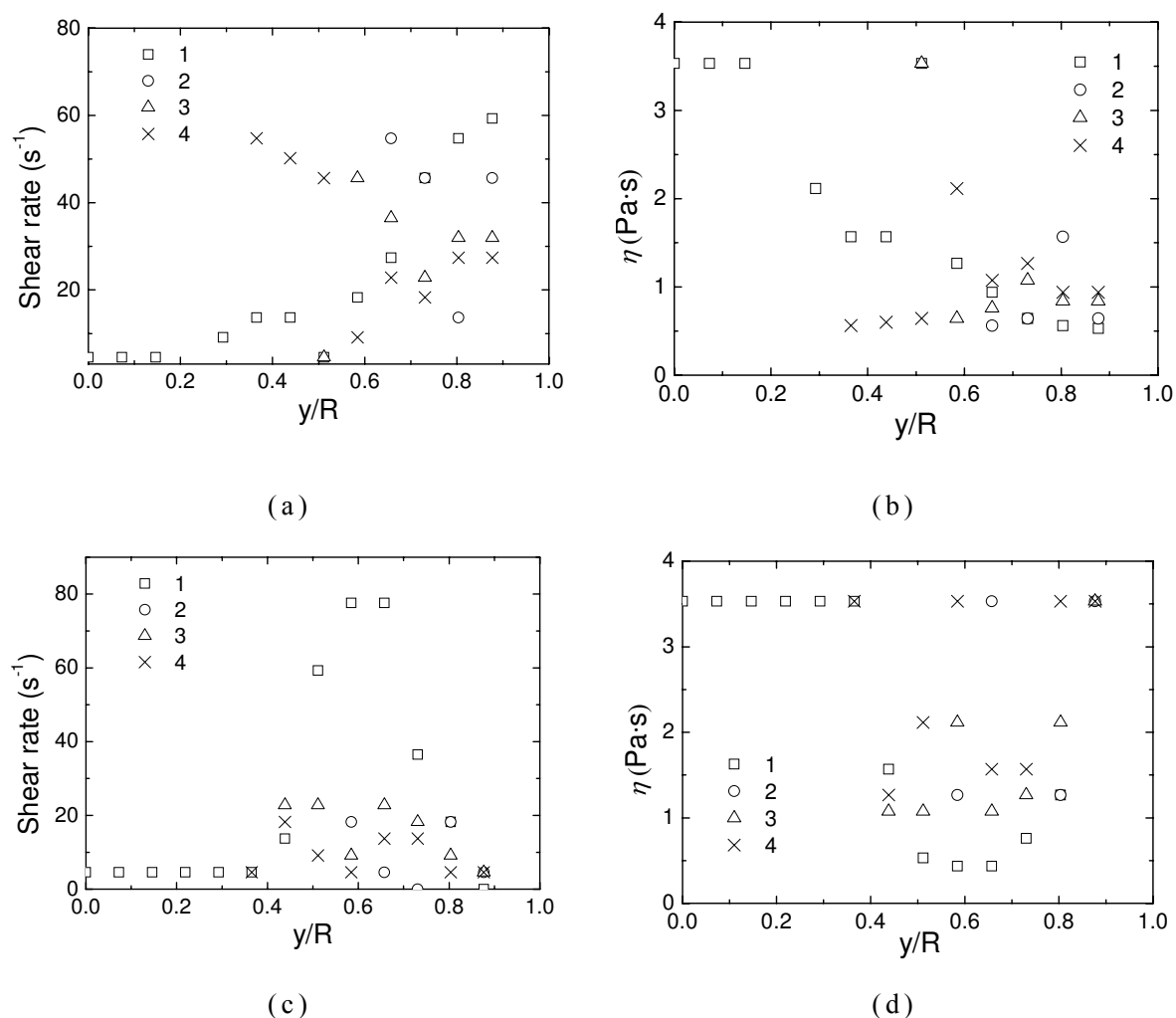


图 4-58 与图 4-57a 对应的纵向位置 I、II 的轴向剪切力及粘度的分布图，
图中 1-4 分别与图 4-57 中 a-d 对应

Fig. 4-58 Shear rate and viscosity distribution around the gaseous thread in the axial direction at the position I、II as shown in Fig.4-57a (I: a-b; II: c-d). The numbers in Fig. 4-58 represent the four pictures in Fig. 4-57. Gas phase: N_2 , $Q_g = 154 \mu L/min$; liquid phase: 1.25 wt % PAAm aqueous solution, $Q_l = 70 \mu L/min$

图 4-59 显示了不同浓度 PAAm 溶液中气体头细丝周围流场的 micro-PIV 测量结果。在一个气泡刚刚脱离，新的周期刚开始的时候 (图 4-59a-b)，PAAm 溶液的浓度越高形成的气体头细丝顶部越尖，刚脱离的气泡的尾部也越尖。从单相流 PAAm 溶液在方形截面

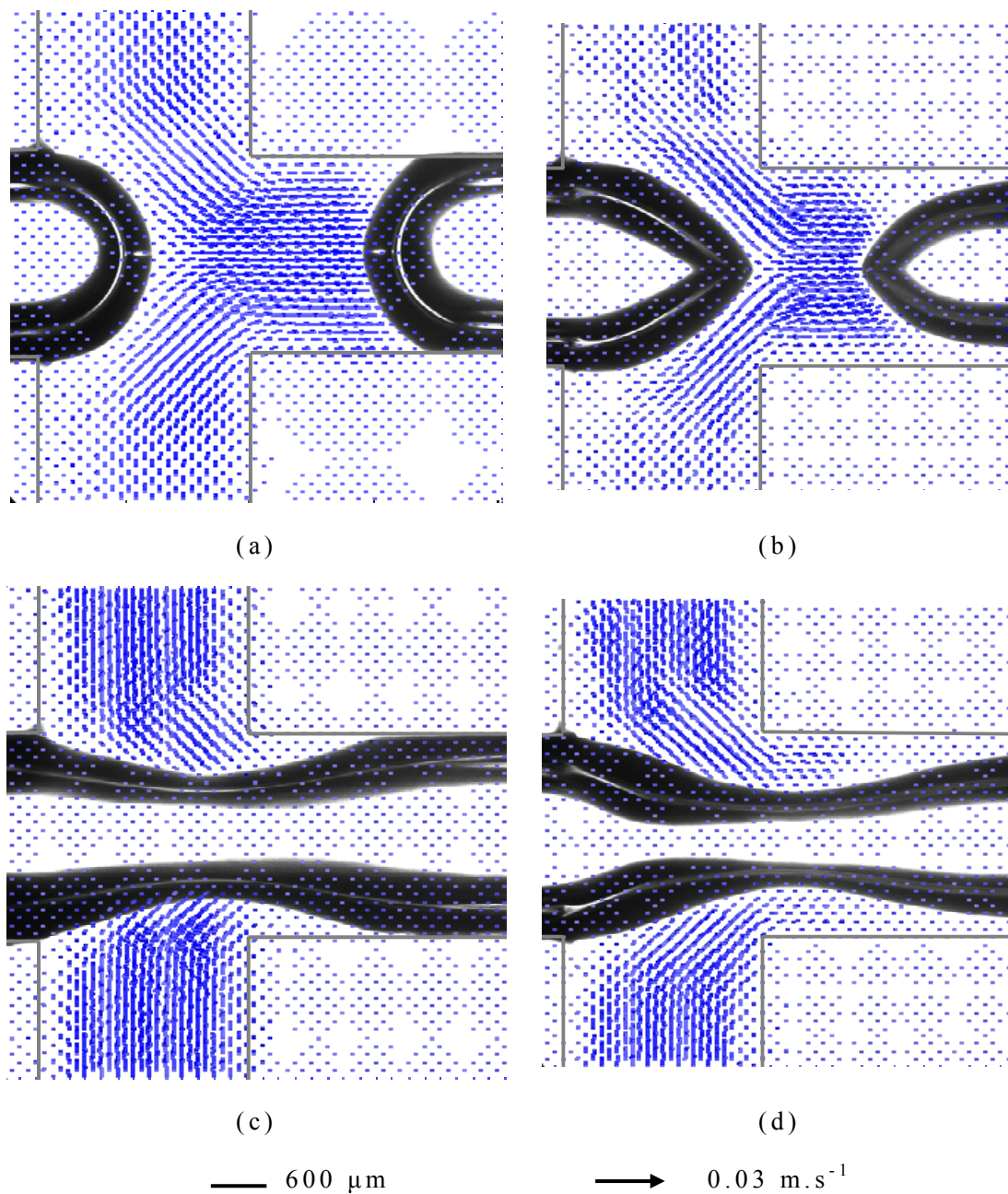


图 4-59 不同浓度 PAAM 溶液中气体头细丝周围流场的比较

Fig. 4-59 Velocity profile around the gaseous thread formed in different concentrations of PAAM solutions: (a)-(c) 0.1 wt% PAAM; (b)-(d) 1 wt% PAAM. $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 70 \mu\text{L}/\text{min}$; (a)-(b) the right beginning of the bubble formation, just after the pinch-off stage; (c)-(d) just before the pinch-off stage

微通道内流场的分布得知（详见 4.2 节）， n 越小，速度场分布越偏

离抛物线，气泡的形状则越偏离牛顿流体中生成气泡的形状。而浓度越大， n 越小。所以，浓度越大，气体头细丝顶部越尖，刚脱离的气泡尾部越尖。从该图中也可以看出，浓度越大，速度场分布的中间部分越平坦。与前面的分析吻合。与大尺度的柱体非牛顿流体中气泡的生成相比^[138]，生成的气泡尾部没有形成负尾涡区。也许是由于本实验为微通道、液体由泵动持续提供的缘故，液体在气泡脱离后没有机会回缩。图 4-59c-d 显示了不同浓度的 PAAm 溶液中气泡脱离之前的某一时刻周围流场的变化。可以看出，高浓度的 PAAm 溶液使气体头变形更厉害，拉伸得更远。

图 4-60 显示了不同浓度的 PAAm 溶液中气泡脱离前气体头细丝颈部周围流体的流线分布。浓度越大，轴向的速度分布越连续，气体头颈部被拉伸得更厉害。对于浓度较低的情况，气体头细丝较宽，阻挡了部分流体，所以有回流的现象，回流的流体亦对夹断过程产生影响。

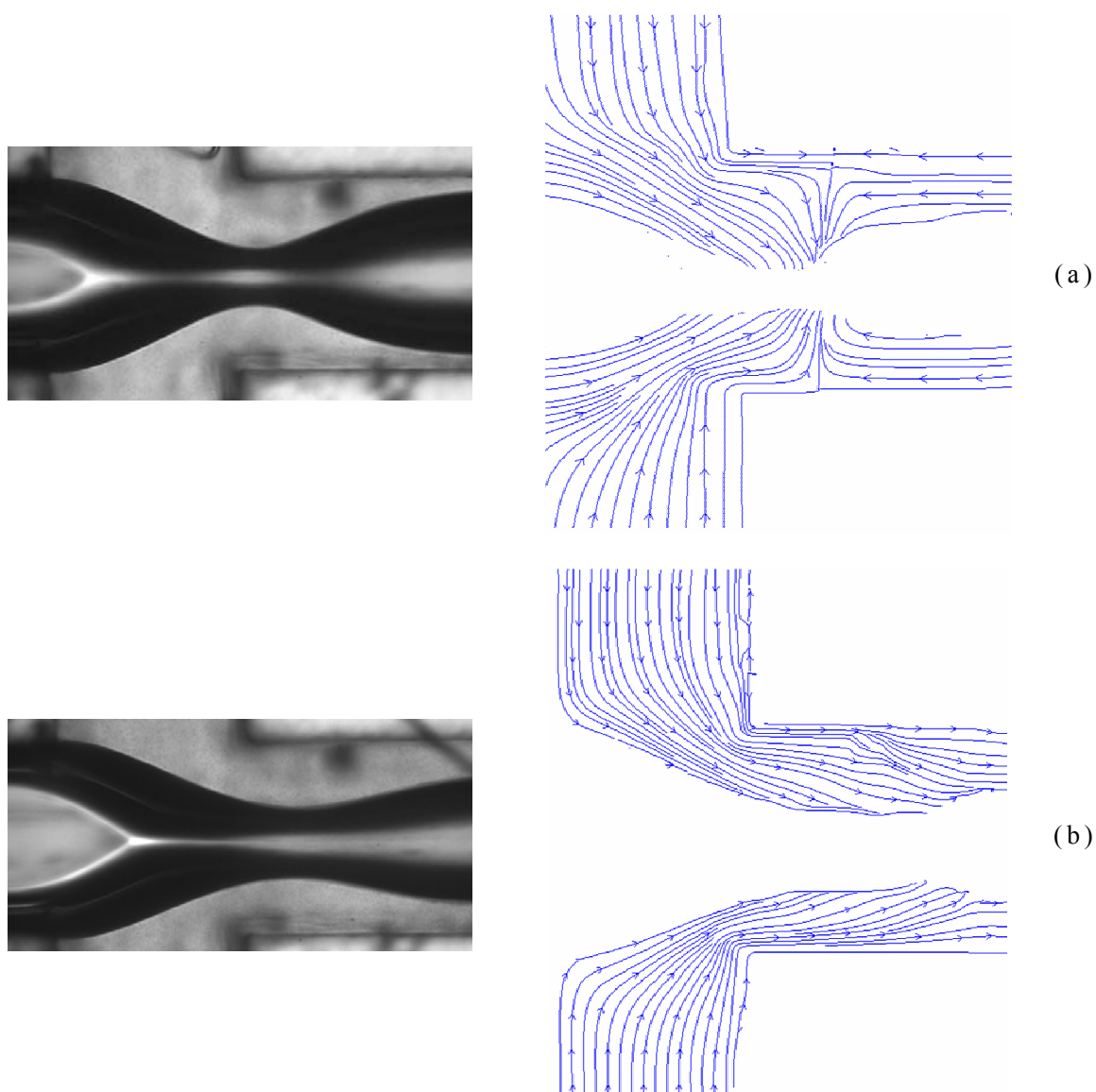


图 4-60 不同浓度的 PAAm 溶液中气体头细丝颈部周围流体流线图比较
 Fig. 4-60 Streamlines in the continuous phase around the gaseous thread just before pinch off in two different concentrations of PAAm solutions: (a) 1.00 wt% PAAm; (b) 1.25 wt% PAAm. $Q_l = 70 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$

4.3.2.4 气泡生成尺寸

定义了一个无量纲数来表征生成气泡的体积： $(L_b W_b^2 / W_c^3)^{1/3}$ ，其中 L_b , W_b 分别表示气泡的长度和宽度，这个无量纲数近似等于与气泡体积相等的球体的当量半径与管道宽度的比值 r_{3D} / W_c 。

图 4-61 显示了气液流量比对气泡生成尺寸的影响。从图中可以看出，气泡生成的尺寸随着液体流量的增加而减小（气体流量一定），随着气体流量的增大而增大（液体流量一定）（图 4-61a）。气泡尺寸随着液气流量比 Q_l/Q_g 的增大而减小（图 4-61b）。当液气流量比 Q_l/Q_g 一定的时候，气泡尺寸受气体流量变化不大（图 4-61b）。这个变化规律同气泡在牛顿流体中的生成，可以用气泡生成过程机理来解释。液体流量越高，剪切速率和液体惯性力越大，加速了气泡延伸和夹断速度，气泡生成周期越短，生成的气泡越小。气体流量越大，对液相的阻力也越大，液相需要更多的时间来夹断气体头细丝，生成的气泡尺寸相对来说就比较大。

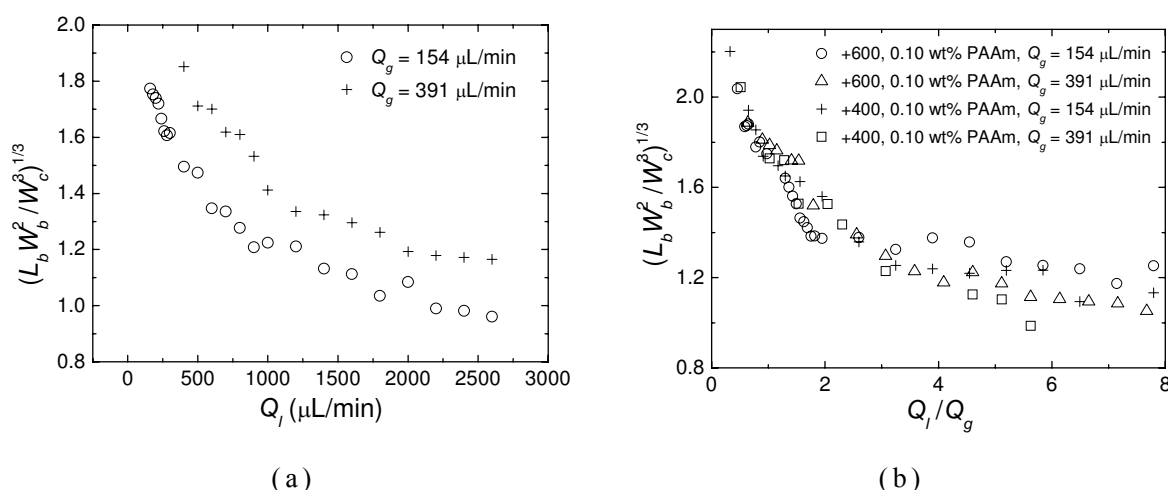


图 4-61 气液流量对气泡生成尺寸的影响

Fig. 4-61 Effects of gas and liquid flow rates on bubble size: (a) liquid flow rates. +600, 0.25 wt% PAAm; (b) ratio of liquid/gas flow rates. 0.10 wt% PAAm

图 4-62a-b 显示了 PAAm 溶液的浓度对气泡生成尺寸的影响。在一定的液气流量比 Q_l/Q_g 下，气泡尺寸随着 PAAm 溶液浓度的增加而减小。在一定的液气流量下，PAAm 溶液的浓度越大，粘度和剪切应力越大，气泡夹断和脱离过程变得越容易，生成周期变短，生成的气泡越小。图 4-62c 显示了管道的尺寸对气泡生成的影响，在一定的液气流量下，气泡生成的尺寸随着管道尺寸的减小而减小。管道的尺寸越小，剪切速率越大，相应的剪切应力越大，气泡生成也越容易，所以气泡生成周期变短，其生成尺寸也变小。

不同操作条件下生成的气泡尺寸可以表示为式 4-25，计算值与实验值的相对误差小于 25%。气体雷诺数范围为 $3.2 \times 10^{-4} < Re_g < 1.2 \times 10^{-3}$ ；液体雷诺数范围为 $2.9 \times 10^{-5} < Re_l < 6.86$ ；液气相雷诺数比例范围为 $0.09 < Re_l/Re_g < 11200$ ；液气流量比范围为 $0.06 < Q_l/Q_g < 18.18$ ；这些条件下气泡生成的尺寸范围为 $0.5 < r/W_c < 2.5$ 。

$$\left(\frac{L_b W_b^2}{W_c^3}\right)^{1/3} = 0.89 \left(\frac{Q_l}{Q_g}\right)^{-0.30} \left(\frac{Re_l}{Re_g}\right)^{0.12} \quad (4-26)$$

式 4-26 表明液体流量比对气泡生成尺寸的影响要比液气雷诺数对其影响大。该式可以用来估算聚焦流十字型微通道内气泡在非牛顿流体中的生成尺寸。

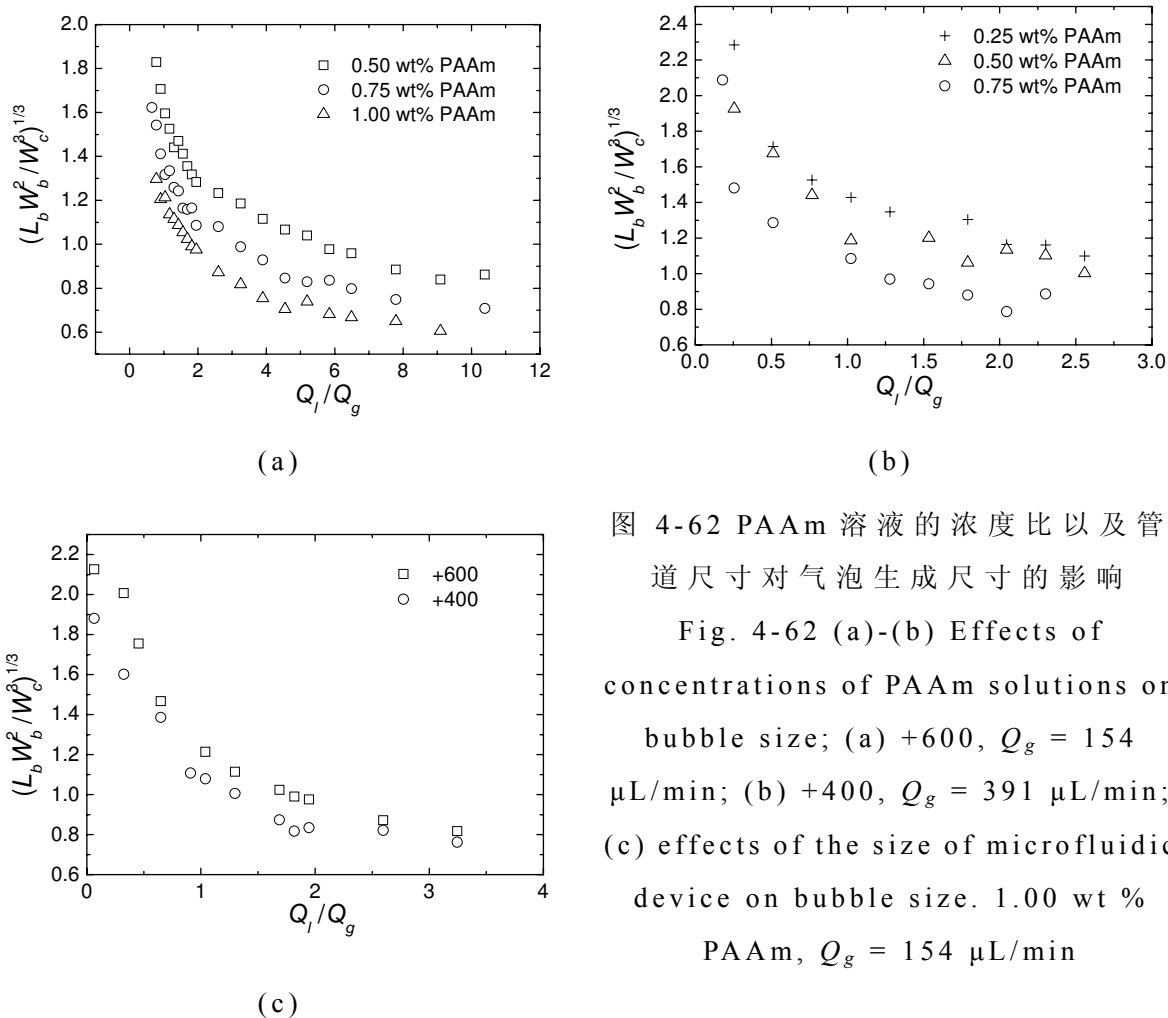


图 4-62 PAAM 溶液的浓度比以及管道尺寸对气泡生成尺寸的影响
 Fig. 4-62 (a)-(b) Effects of concentrations of PAAM solutions on bubble size; (a) +600, $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) +400, $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$; (c) effects of the size of microfluidic device on bubble size. 1.00 wt % PAAM, $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$

4.3.2.5 气泡周围流场与形状的关系

图 4-63 显示了液体流量对气泡形状的影响。

当流量比较小的时候（图 4-63a），气泡头部比尾部窄，而且头部的曲率半径要小于尾部的曲率半径，气泡前后的流场有差别，此时的气泡宽度比管道的宽度略小，气泡与管壁之间的剪切力还不足以将气泡拉得很长，因为此时的雷诺数和毛细管数都比较小。

当流速增大到某一值后，气泡被拉长，前后宽度基本一致（图 4-63b），气泡尾部的曲率半径还是比头部的大，但是差别已经不是很明显，此时的气泡宽度比图 4-63a 中的要窄，但是整个气泡的体积比图 4-63a 中的要小（由前面气泡尺寸节结论得知）。此时的流速增大，毛细管数和雷诺数都增大，惯性力和剪切力都变大，气泡和管壁之间空间的剪切力已经能够拉伸气泡，使其前后宽度一致，而惯性力还没有大到不受气泡影响，所以前后曲率半径还有差别。

继续增大液体流量（图 4-63c-d），惯性力和剪切力影响继续增大，气泡变短变窄，前后流场基本没有多大变化，而且气泡宽度前后一致，头尾曲率半径已经相差不大。

通过气泡的形状和大小，可以反过来得知流量的相对大小。这也为流量的大小判断提供了一种方法。本例中，图 4-63a-d，气泡逐渐变窄，气泡宽度前后逐渐一致，头尾曲率半径越来越趋于一致，气泡前后流场的差别越来越小，可以判断出，液体流量是由小逐渐增大。

图 4-64 显示了气泡形状与 PAAm 溶液浓度的关系。溶液浓度越大，气泡越短，宽度越窄，气泡头尾曲率以及前后流体流场略有差别。溶液浓度越大，在相同的气液流速下，剪切力越大，所以气泡越窄，而气泡长度与生成过程有关，剪切力越大，气泡生成过程中越容易脱离，故越短。通过气泡的形状可以判断出溶液浓度的大小。本例中，气泡越短越窄，溶液浓度越大，指数 n 越小。

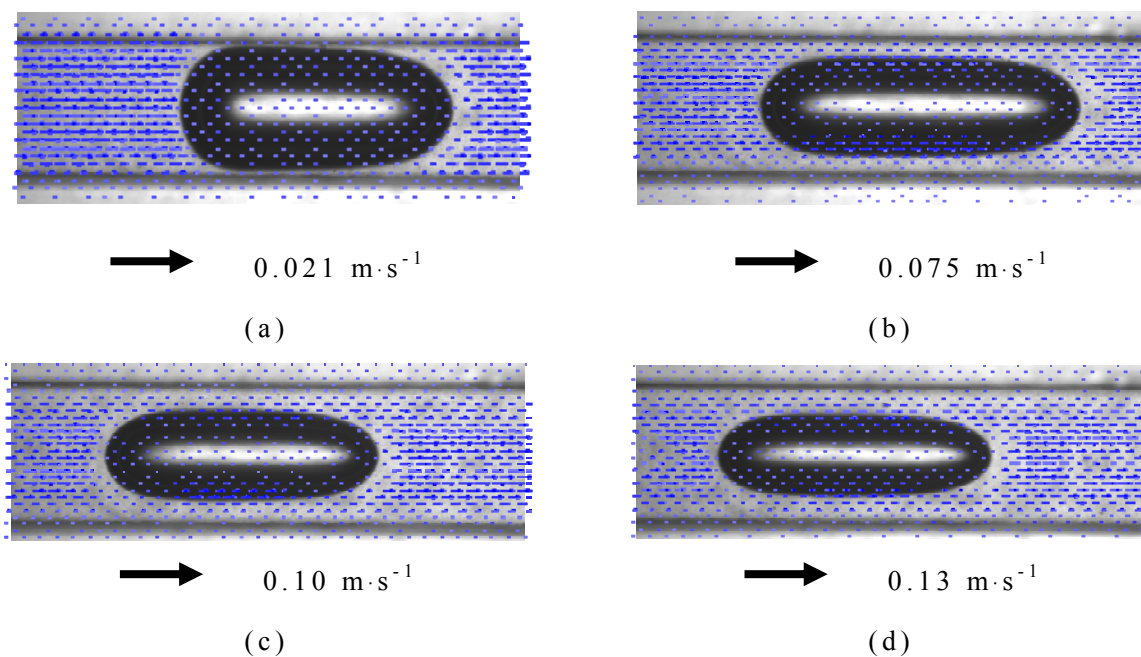


图 4-63 气泡形状与液体流量的关系

Fig. 4-63 Relationship between the bubble shape and the liquid flow rates. +400. 1.25 wt%PAAm. $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$. (a) $Q_l = 50 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) $Q_l = 150 \mu\text{L}/\text{min}$; (c) $Q_l = 200 \mu\text{L}/\text{min}$; (d) $Q_l = 250 \mu\text{L}/\text{min}$

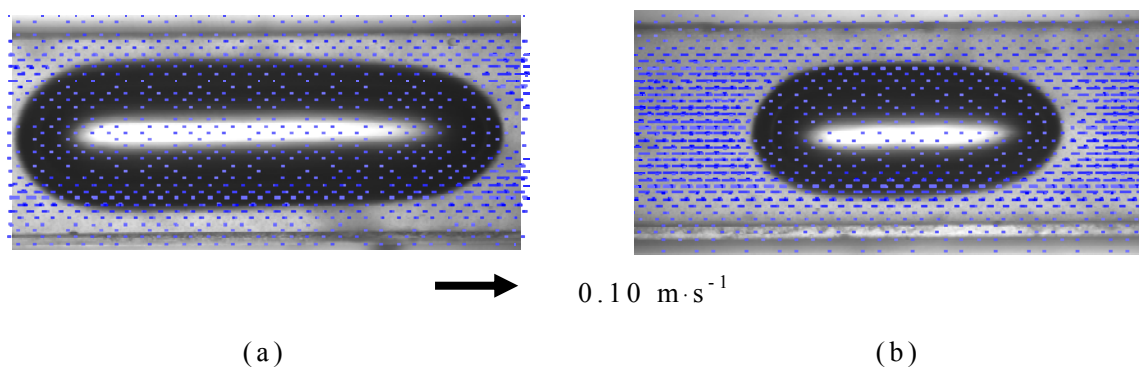


图 4-64 气泡形状与 PAAm 溶液浓度的关系

Fig. 4-64 Relationship between the bubble shape and the concentration of PAAm solutions. +600. $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$. $Q_l = 400 \mu\text{L}/\text{min}$; (a) 0.75 wt%PAAm; (b) 1.25 wt%PAAm

4.3.2.6 结论

这一节研究了气泡在 PAAm 溶液中的生成，详细研究了气泡的生成过程以及生成机理。用高速摄像机实时观察和记录了气泡的动态过程；用 micro-PIV 实时测量了气泡形成过程中周围流场的变化情况。

实验发现，气泡脱离宽度在液气流量比高于某一临界值的时候，随其增大而减小，这一临界值随着液体浓度和管道尺寸的变化而变化。

气泡的生成过程可以分为膨胀、夹断和脱离阶段。气泡在 PAAm 溶液中被拉伸得比较长，其气泡的宽度比管道的宽度可以小很多，结果表明溶液的剪切变稀特性对气泡生成过程有重要的影响。通过定量分析发现，气泡生成过程中其截面只占管道截面一部分，挤压力对其生成过程不像气泡在牛顿流体中的那样大。流体对气泡头部的惯性力、剪切力和表面张力共同控制气泡的生成过程。通过气泡生成过程周围流场的测量，发现十字型交叉口两侧连续相引入管角落产生漩涡。与大尺寸管道中非牛顿流体中生成的气泡尾部流场不同的是，气泡尾部不存在负尾涡区。

气泡的生成尺寸随气液流量、溶液浓度以及管道尺寸的变化而变化，提出了一个基于气液流量比和气液雷诺数比的气泡生成尺寸预测模型。

定量研究了下游主通道内气泡的形状与周围流场以及操作条件的关系，通过定性观测气泡形状，可以判断出液体流量的变化趋势以及 PAAm 溶液浓度的变化趋势，为非牛顿流体的流变指数的预测和测量提供了一种新的途径和方法。

实际应用中，流体通常为非牛顿流体。已报道的微通道内气泡在非牛顿流体中的研究非常少^[78]，不论是实验、模拟还是理论研究。本节的基础实验研究弥补了这方面的工作，为进一步的实验、模拟及理论研究打下了基础，并为微通道的应用开发技术提供一定的指导。

4.4 含突扩结构的微通道内气泡的聚并

本节考察了气泡在含突扩结构的微通道(E400)内气泡的行为。由于管道的突然扩大引起了流场的变化,对气泡的流动行为产生影响。最直接的影响就是气泡聚集在一起,很有可能发生聚并,使气泡最终的生成尺寸分布广泛。如果要得到比较均一的气泡,应该避开容易发生聚并的范围。本节研究了气泡发生聚并的条件和机理。

4.4.1 牛顿流体中的聚并

对于空气-水两相流来讲,表面张力很大,气泡在突扩部分很快地聚并,而且气泡在径向方向延伸至两侧壁面。当增加液体的粘度、减小液体表面张力的时候,聚并概率大大降低,这时候从出口流出的气泡均一性比较好,通过控制气液流量比就可以达到控制气泡尺寸的目的。如果只是在液体里加入表面活性剂(本实验用 SDS),聚并有时候也发生。气泡聚集在扩大部分,很多气泡互相挨着,相互挨着的气泡影响气泡发生的频率。这时候装置内扩大部分充满了气泡,不太容易定量地分析气泡聚并过程。本实验用相邻气泡速率演变曲线来定量研究气泡聚并的过程。

气泡聚并过程呈随机性,本实验在特定的操作条件下进行。液体为含 0.1 wt% SDS 的水溶液,气体为氮气。气液体积流量分别为 $Q_g = 573 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 2000 \mu\text{L}/\text{min}$ 。在突扩收集气泡部分发生聚并的概率为 4.24%(个数概率)。气泡聚并的过程可以概括为:气泡相互靠近;一个气泡追上另一个气泡并与之相撞;两气泡之间形成了一个液膜“桥”(bridge)或者反弹互相分开;形成液膜桥的情况下,紧接着两气泡再前进一定距离,经过一定时间后,很快聚并。下面介绍几例气泡聚并过程。

4.4.1.1 在线两气泡之间的聚并

图 4-65 显示了在线的两气泡在牛顿流体中的聚并过程的图片。图 4-66 显示了气泡聚并过程中两在线气泡的速度演变图。把气泡正好连在一起的时刻设置为气泡聚并过程的开始即 0 时刻,而把连在一起的气泡完全合并(fusion)在一起的时刻设置为气泡聚并过程

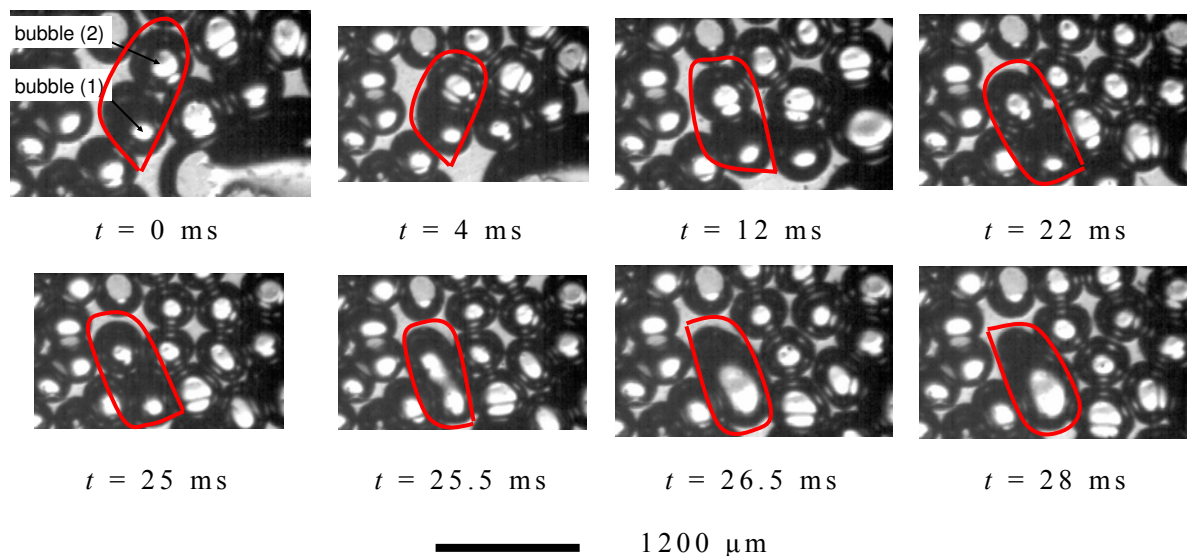


图 4-65 牛顿流体中在线两气泡间的聚并过程图

Fig. 4-65 Optical micrographs of the evolution of the coalescence of in-line bubbles in Newtonian fluids. N_2 , Liquid phase: 0.1 wt% SDS-water solution, $Q_g = 573 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 2000 \mu\text{L}/\text{min}$

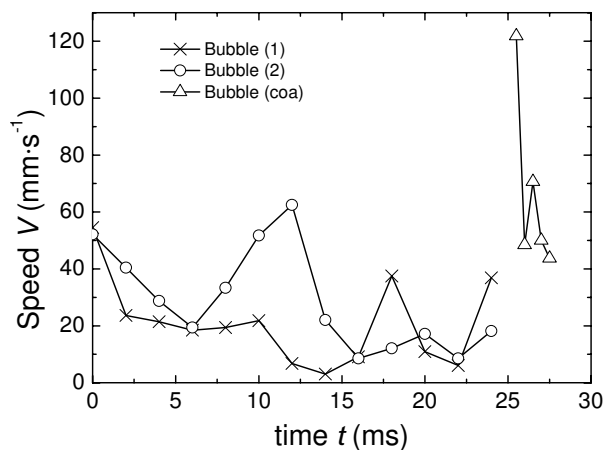


图 4-66 牛顿流体中在线两气泡聚并过程速度演变图

Fig. 4-66 Speed evolution of the coalescence of in-line bubbles in Newtonian fluids. N_2 , Liquid phase: 0.1 wt% SDS-water solution, $Q_g = 573 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 2000 \mu\text{L}/\text{min}$

的结束时刻。气泡（2）的速度比气泡（1）的速度要快，经过一个相对很长的时间段 25 ms，两气泡一直紧挨着连在一起。而聚合的

过程很快完成，约为 0.5 ms。然后聚合在一起的气泡继续前进并最终完全合并在一起。聚并完成后气泡的速度陡增，然后逐渐减小。

4.4.1.2 在线三气泡之间的聚并

图 4-67 显示了在线的三气泡在牛顿流体中的聚并过程。图 4-68 显示了气泡聚并过程的速度演变过程。三个气泡在聚并前呈三角形排列。当前两个气泡聚合在一起后，比第三个气泡大很多，然后经历一段时间和距离后，大的气泡使小的气泡破裂并合并在一起，形成了更大的气泡。

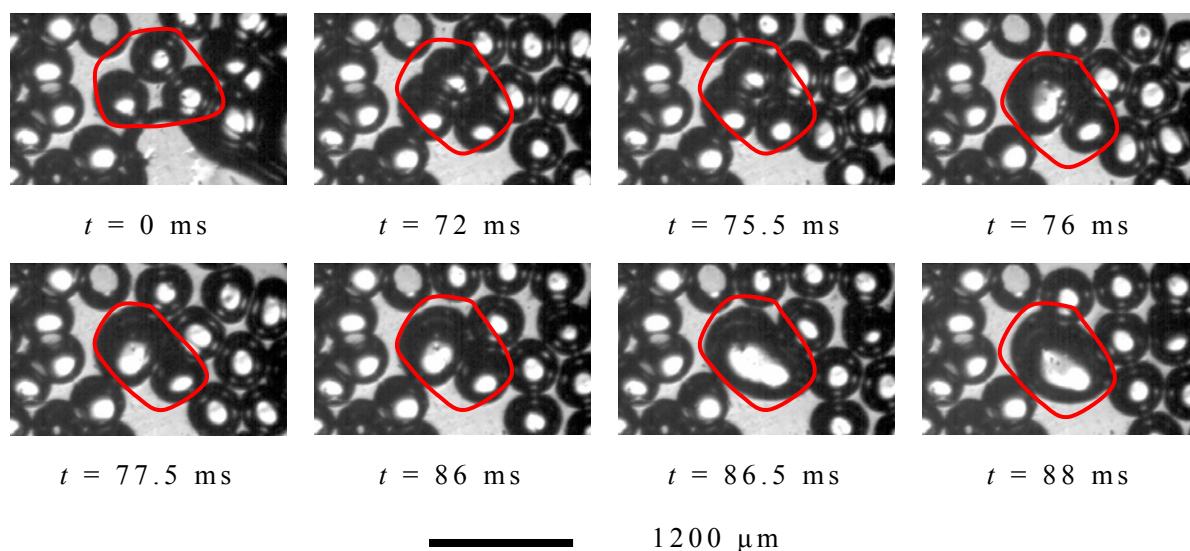


图 4-67 牛顿流体中在线三气泡间的聚并过程图

Fig. 4-67 Optical micrographs of the evolution of the coalescence of three in-line bubbles in Newtonian fluids. N_2 , Liquid phase: 0.1 wt% SDS-water solution, $Q_g = 573 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 2000 \mu\text{L}/\text{min}$

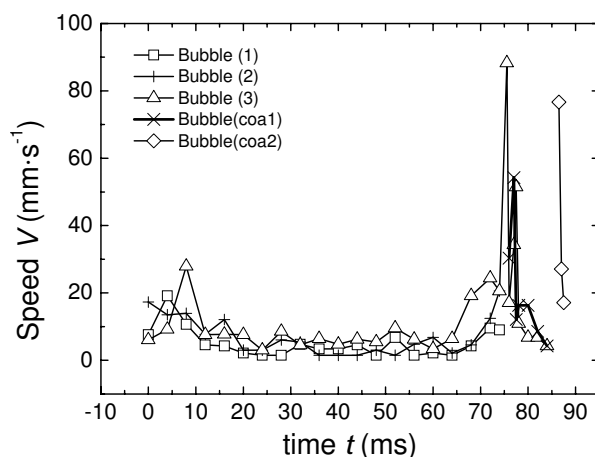


图 4-68 牛顿流体中在线三气泡聚并过程速度演变图

Fig. 4-68 Speed evolution of the coalescence of three in-line bubbles in Newtonian fluids. N_2 , Liquid phase: 0.1 wt% SDS-water solution, $Q_g = 573 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 2000 \mu\text{L}/\text{min}$

4.4.2 非牛顿流体中的气泡聚并

气泡在非牛顿流体中的聚并过程更复杂。突扩收集部分的气泡行为与在牛顿流体中不同的是，气泡成排从出口流出，而不是像在牛顿流体中一样，在收集部分聚集。本实验研究条件为： $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$ 。气体为氮气，非牛顿流体为含 0.5 wt% PAAM 的水溶液。下面介绍部分除了最后一节，其他操作条件均同。

4.4.2.1 在线两相等气泡之间的聚并

图 4-69 显示了在线两相等气泡在非牛顿流体 0.5 wt% PAAM 水溶液中的聚并过程图。聚并过程开始到结束时间即聚并周期为 123.5 ms。这个过程可以分为三个阶段：首先，在 $t = 0 \text{ ms}$ 时刻，两孤立的气泡互相接触碰撞，在这个阶段，由于流体的流动性，后面的气泡追上前面的气泡；接着为紧挨着相连的气泡的发展阶段，从 $t = 0 \text{ ms}$ 到 $t = 123 \text{ ms}$ 时间段，两相连的气泡一起运动；最后，在 $t = 123.5 \text{ ms}$ ，连着的气泡合并，在这个阶段，两气泡以很快的速度合并在一起。两气泡合并后，继续向下游运动，并逐渐发展为新的平面呈圆形的气泡。

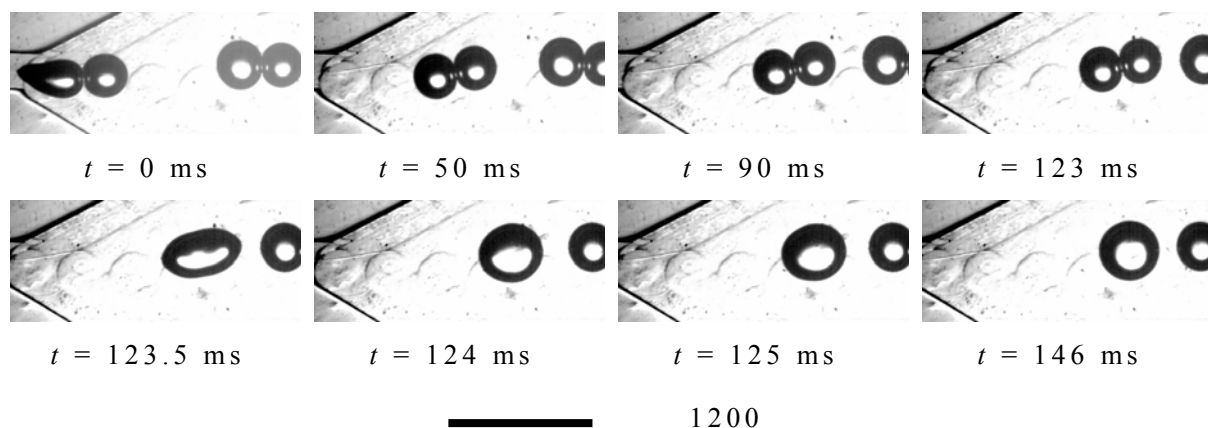


图 4-69 非牛顿流体中在线两体积相等气泡间的聚并过程图

Fig. 4-69 Optical micrographs of the evolution of coalescence of in-line bubbles in 0.5 wt% PAAm aqueous solution. $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$

图 4-70 显示了与图 4-69 对应的气泡聚并过程中的位置和速度演变图，前面两图以两气泡的中心以及聚并后的中心为研究对象，后面两图以两连着气泡之间的连接点和合并之后的中心为研究对象。把突扩部分主管道的中心线终点设置为 0 位置。两气泡位置呈非线性增长。在聚并的时刻，前面的气泡突然快速后缩，后面的气泡突然快速向前。合并后的气泡的质量中心在合并前的两气泡中心之间。在聚并之前，两气泡的速度几乎是一样的。但是在聚并瞬间，前面气泡的速度突然下降，而后面气泡的速度突然增加，接着，合并的气泡减速，并以逐渐减小的速度流向下游。在聚并的瞬间，两连着的气泡之间的连接点的速度也突然加速。

图 4-71 分别显示了两气泡在接触前和聚并前某一时刻的照片。两气泡之间的空隙形成了一层膜，称为空隙膜（interstitial film）。空隙膜中心位置的压强最低，所以可以形成一个液膜“桥”（‘bridge’、‘nipple’^[142]），液膜“桥”不断发展并在两连着的气泡聚并后消失。

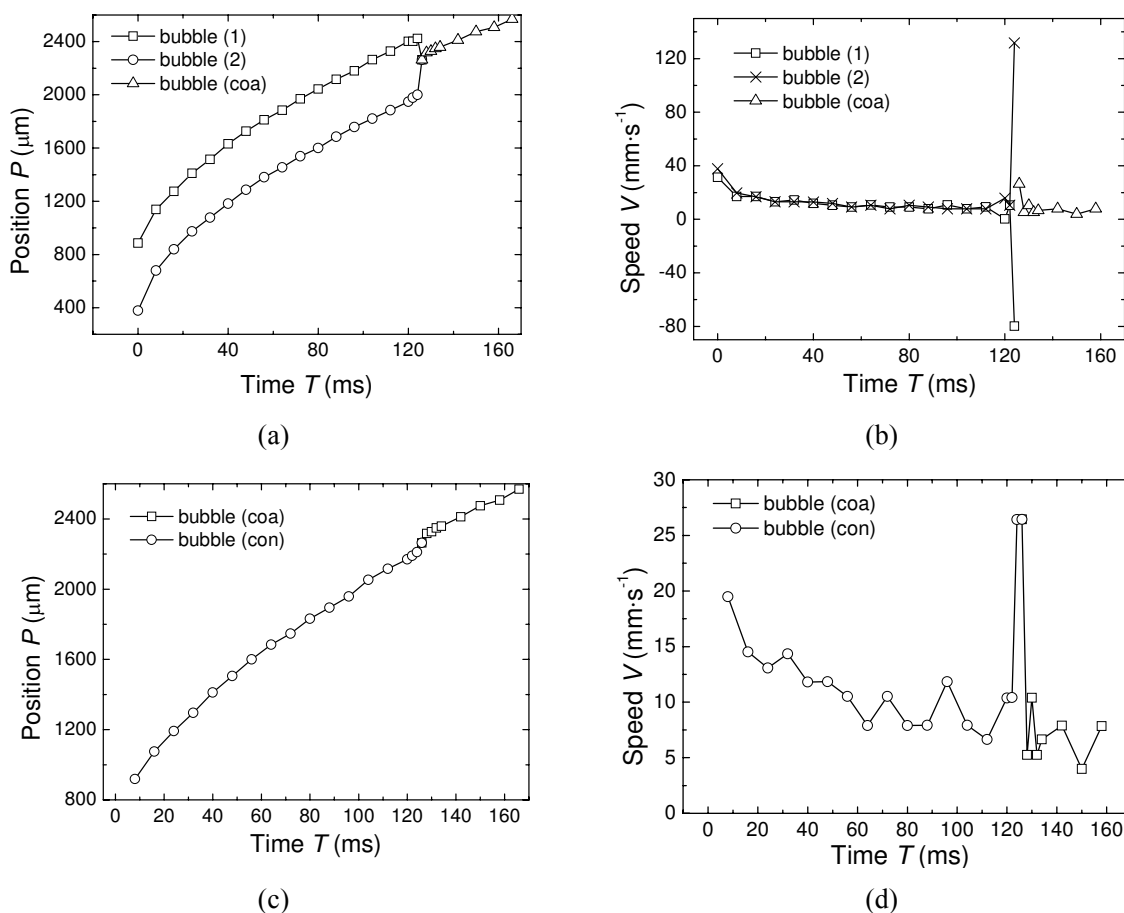


图 4-70 非牛顿流体中在线两体积相等气泡聚并过程速度演变图

Fig. 4-70 Speed evolution of the coalescence of in-line bubbles in 0.5 wt% PAAm aqueous solution. $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$

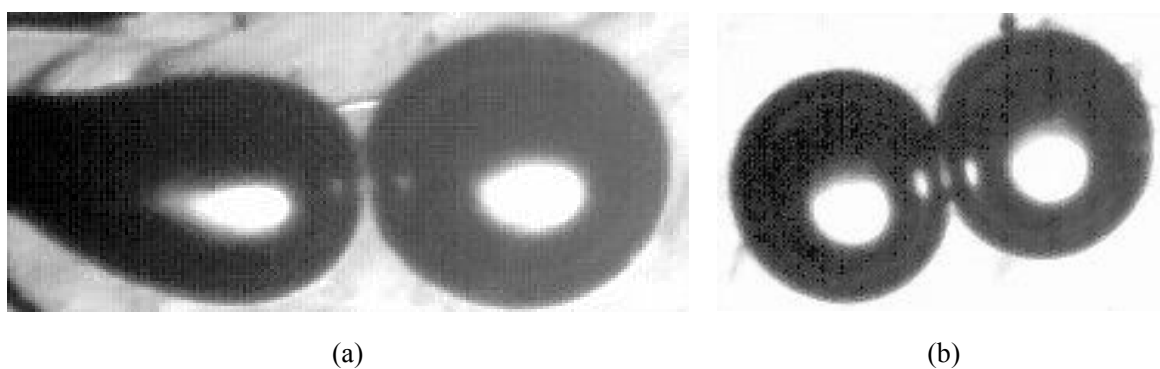


图 4-71 气泡接触和聚并时刻前的图片

Fig. 4-71 Micrographs of bubbles just before contact and coalescence, respectively. (a) $t = -0.5 \text{ ms}$ (just before contact); (b) $t = 123 \text{ ms}$ (just before coalescence). Liquid phase: 0.5 wt% PAAm aqueous solution.

$Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$

4.4.2.2 在线两不等气泡的聚并：小气泡追大气泡

图 4-72 和图 4-73 显示了小气泡追上在线的大气泡，并连在一起，最后聚并的过程图、位置和速度演变图。这种情况与前面介绍的情况类似。不同的是，两气泡聚并的瞬间过程持续的时间要长一些。从图片可以看到聚并后瞬间的两气泡连在一起呈葫芦状，而前面介绍的聚并后瞬间的两气泡呈正在笑的嘴形。这种聚并后气泡形态的不同来自聚并前两气泡的相对大小。

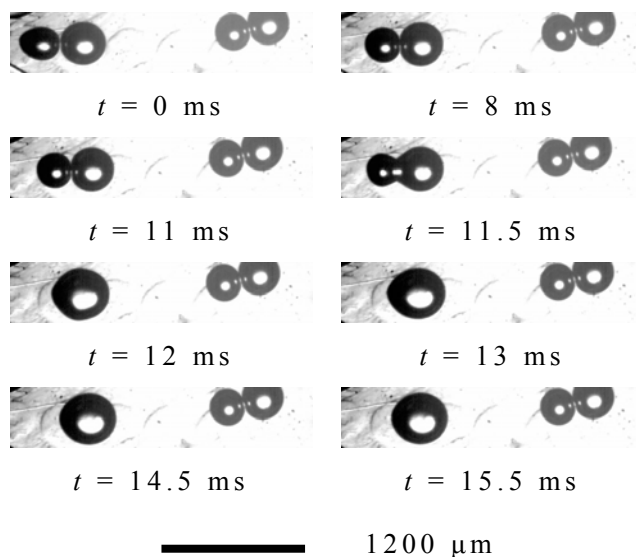


图 4-72 非牛顿流体中在线小气泡追上大气泡并与之聚并的过程图

Fig. 4-72 Optical micrographs of the evolution of coalescence of in-line bubbles in 0.5 wt% PAAM aqueous solution: small bubble catches up with big bubble. $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$

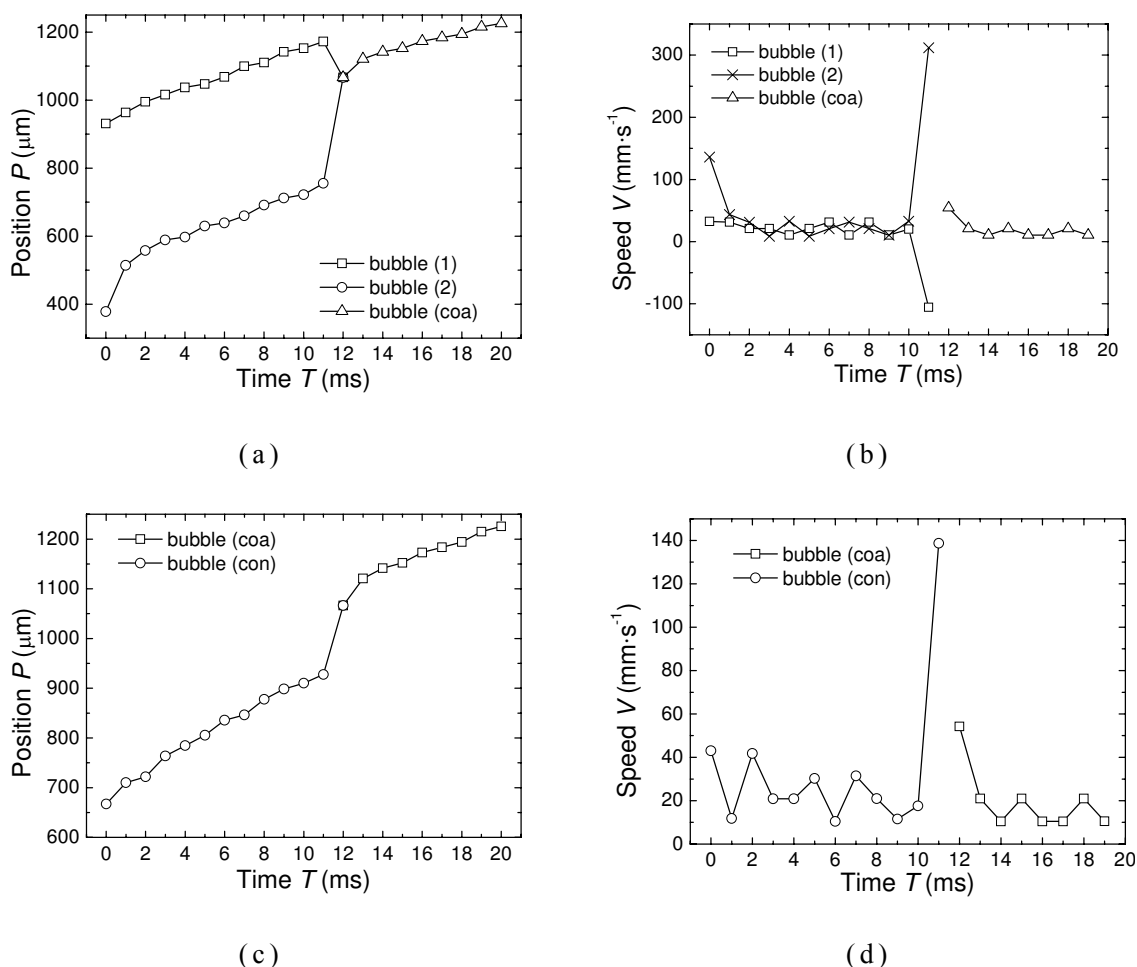


图 4-73 非牛顿流体中在线小气泡追上大气泡并与之聚并的速度演变图
 Fig. 4-73 Speed evolution of the coalescence of in-line bubbles in 0.5 wt% PAAm aqueous solution: small bubble catches up with big bubble. $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$

4.4.2.3 平行两不等气泡的聚并

图 4-74 和图 4-75 显示了平行两不等气泡聚并过程的图片、位置和速度的演变图。整个过程持续周期为 281 ms。在前 50 ms, 两气泡在线运动, 之后, 后面的气泡即气泡 (2) 逐渐滑移到前面气泡即气泡 (1) 的径向位置, 并与其挨着平行并肩向下游运动。在聚并时刻, 气泡 (2) 突然并向气泡 (1), 这个过程持续时间小于 0.5 ms。气泡 (2) 在聚并时刻加速而气泡 (1) 的加速度并没有变化。这是因为气泡 (1) 的体积比气泡 (2) 的体积大很多, 气泡

(2) 聚并在气泡 (1) 中后, 对其速度并没有产生显著的影响。

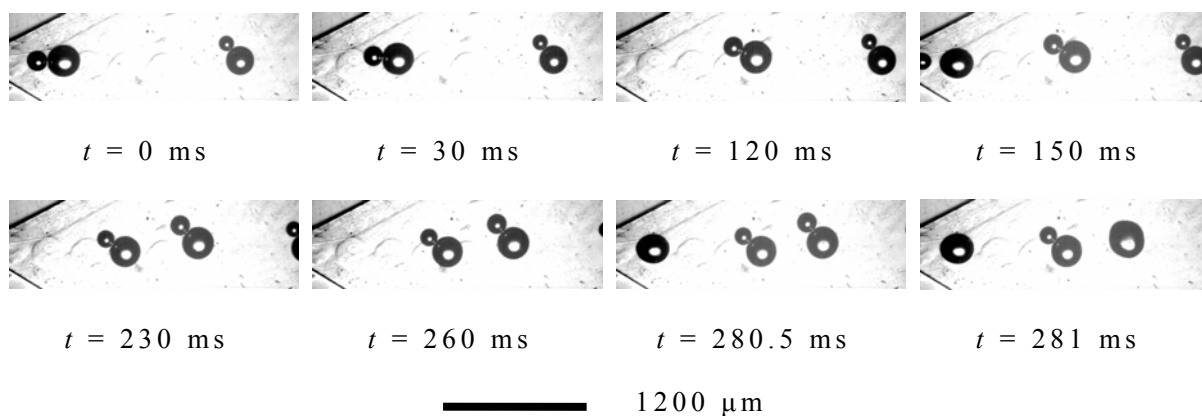


图 4-74 非牛顿流体中平行的小气泡追上大气泡并与之聚并的过程图
 Fig. 4-74 Optical micrographs of the evolution of coalescence of parallel bubbles in 0.5 wt% PAAM aqueous solution. $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$

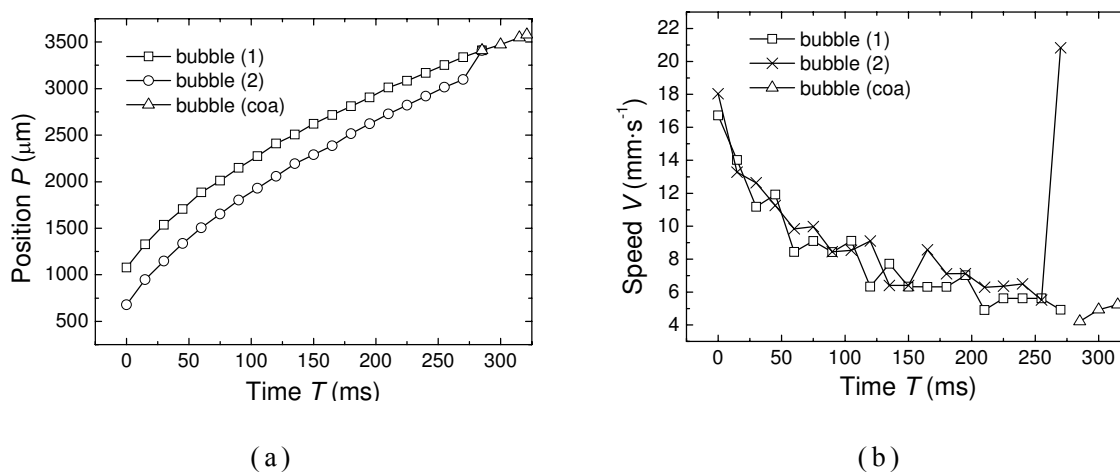


图 4-75 非牛顿流体中平行的小气泡追上大气泡并与之聚并过程的速度演变图
 Fig. 4-75 Speed evolution of the coalescence of parallel bubbles in 0.5 wt% PAAM aqueous solution. $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$

4.4.2.4 气泡聚并位置及概率

实验发现, 非牛顿流体中的气泡在突扩收集部分以气泡群形式

出现并流向出口。所以，研究了气泡群，并观察聚并现象和计算出出现聚并的概率。对于聚并情况，研究了不同聚并过程出现的聚并位置以及聚并周期的特性。聚并概率结果见图 4-76，不同气泡群中的气泡聚并的概率小于 25%，平均聚并概率为 9.6%。

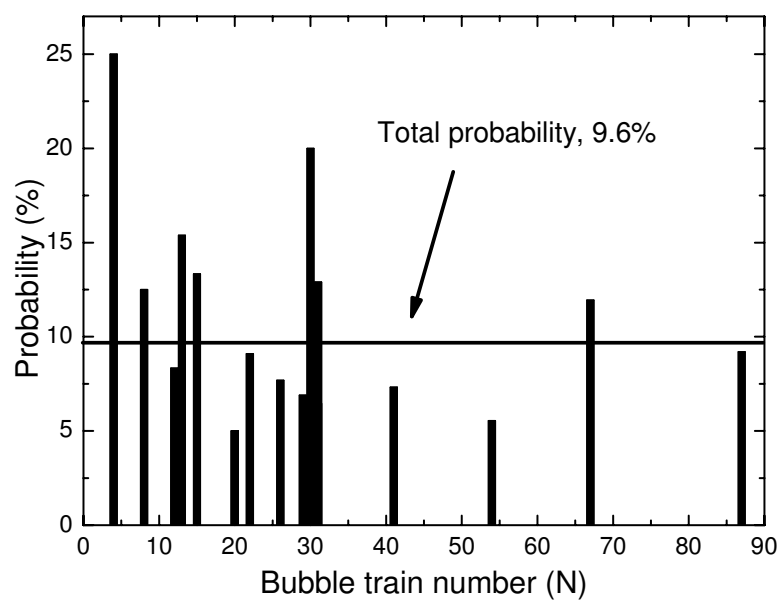


图 4-76 气泡聚并概率

Fig. 4-76 Probability of N₂ bubble coalescence in 0.5 wt% PAAM solutions.

$$Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}, Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$$

图 4-77 显示了聚并位置 x_c 与聚并周期 T 的关系。相同气液流量情况下，离突扩口越远的地方发生的聚并，其聚并周期也越长。本实验中，两者的关系可以表示为：

$$\ln x_c = 0.32 \ln T + 6.16, T \in (0, 500) \quad (4-27)$$

气泡聚并周期 T 与聚并时刻之前两气泡中心位置 D_o 的关系见图 4-78。气泡聚并周期随两聚并气泡中心位置的距离的增大而减小，其数量关系可以表示为：

$$\ln T = -2.57 \ln D_o + 20.64 \quad (4-28)$$

$$D_o \in (350, 500), T \in (0, 500)$$

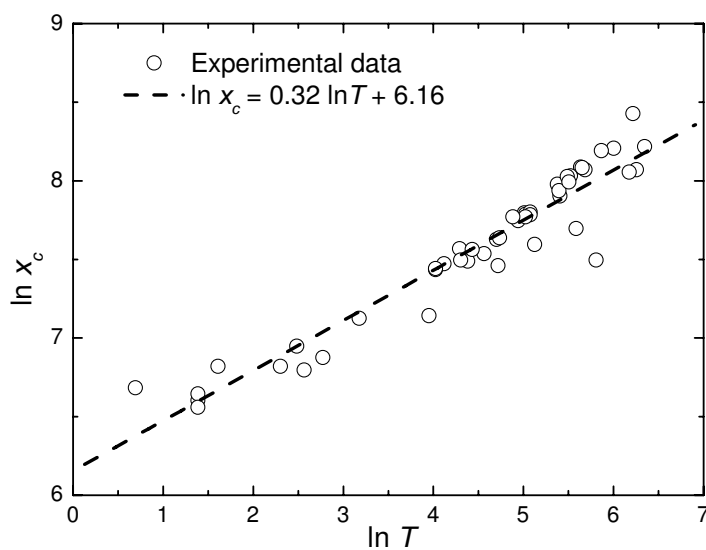


图 4-77 气泡聚并位置与聚并时间的关系

Fig. 4-77 Relationship between the location and period for bubble coalescence. Liquid phase: 0.5 wt% PAAM solutions. $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$

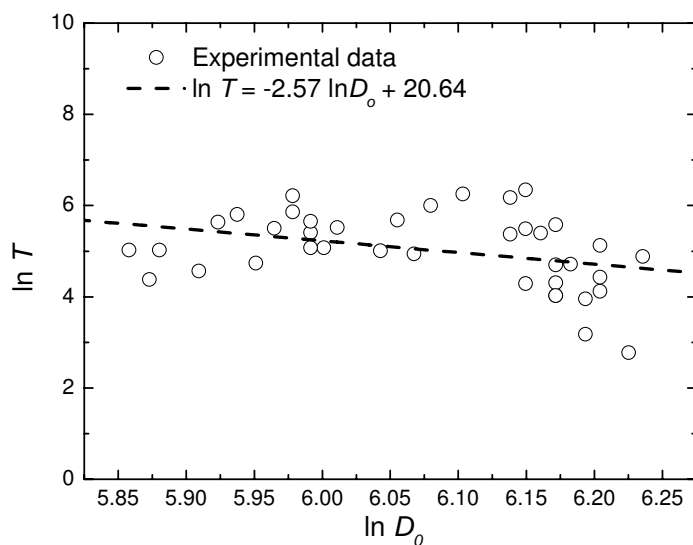


图 4-78 气泡聚并时间与两气泡之间距离的关系

Fig. 4-78 Relationship between the period for bubble coalescence and the distance of two bubbles. Liquid phase: 0.5 wt% PAAM solutions. $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$

4.4.2.5 速度场分布

用 micro-PIV 实验测量了气泡流过突扩部分周围流场的情况。由于聚并过程很快（小于 0.5 ms），本实验并没有捕捉到聚并时刻气泡周围流场的情况。实验测量了两个不同位置的流场情况：离主通道末端中心位置分别为 0 μm 和 2299.85 μm 。实验测量结果均为两连着气泡周围流场的情况。结果见图 4-79。

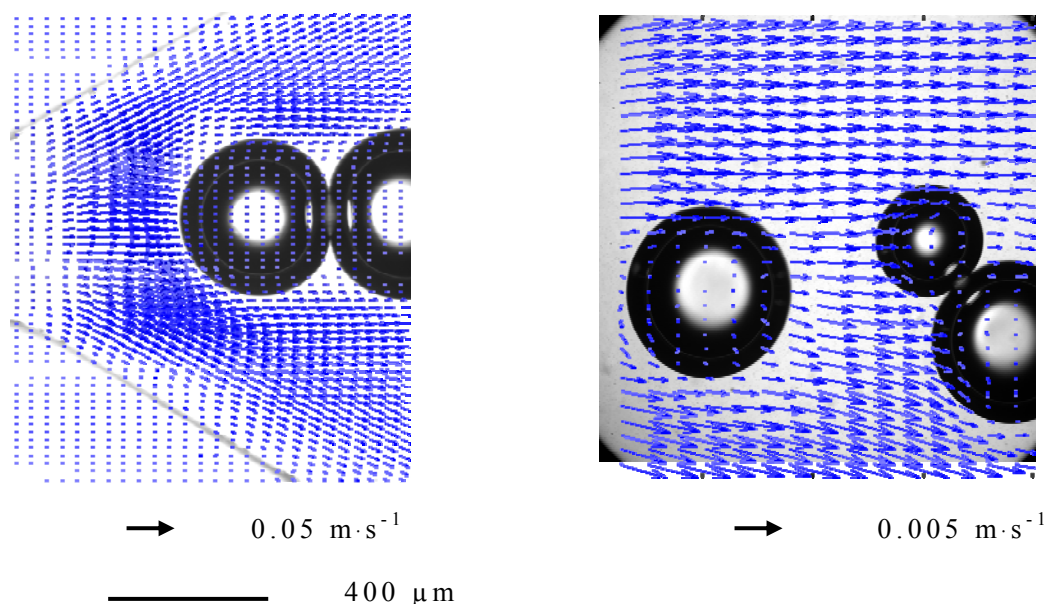


图 4-79 微通道突扩部分内气泡周围流场图

Fig. 4-79 Velocity distributions of the liquid phase around the aligned bubbles in the expansion section, at different distance from the entrance of the expansion section: (a) 0 μm ; (b) 2299.85 μm . Liquid phase: 0.5 wt% PAAM solutions. $Q_g = 267 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$

可以看出流体呈现层流流动，气泡在流体推动下向下游发展，由于流场在气泡周围并没有发生大的变化（与相同轴向位置，远离气泡的其他径向位置的流场相比）。可以推测，在气泡连在一起之前，流体起的作用为推动后面的气泡追上前面的气泡；对于聚并过程，流动着的流体并不是主要的因素，而气泡之间形成的液膜“桥”的发展和其所受的力为气泡聚并的主要因素。

4.4.2.6 气泡聚并机理

实验发现，对于 0.5 wt% PAAm 溶液中的氮气气泡经过突扩口时，气泡随气液流量的不同呈现出两种不同的聚并机理。机理 1：从主通道流出的两不同气泡之间的聚并；机理 2：同一气泡从主通道流到突扩部分时候被分裂成两气泡，该两气泡之间的聚并。气泡不同的聚并方式由气液流量决定，见图 4-80。在一定的液体流量下，当液体流量增大到某一个值后，气泡聚并由机理 1 变化到机理 2，这个液体流量称为临界液体流量。临界液体流量随着气体流量的增大而增大。

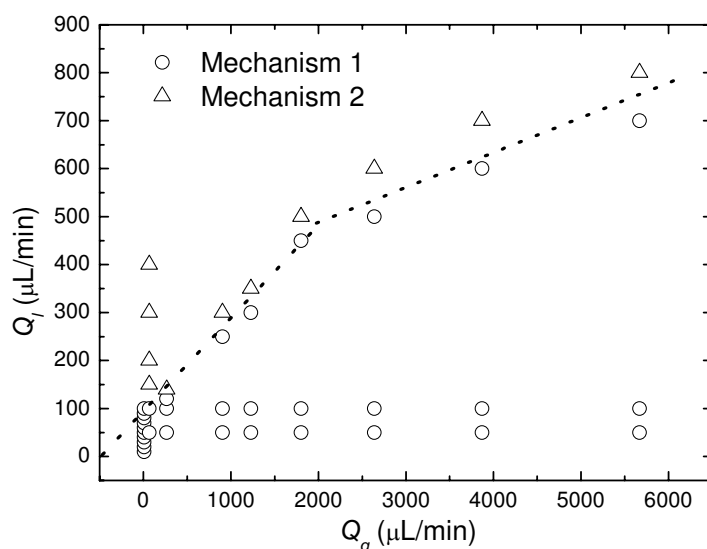


图 4-80 气泡聚并机理

Fig. 4-80 Two different mechanisms for bubble coalescence. Liquid phase: 0.5 wt% PAAm solutions

气泡在突扩部分的分裂可以用经典的 Rayleigh-Plateau 不稳定理论和受阻流体内积压挤压气泡颈部机理来解释。在微通道的突扩部分，由于空间的突然扩大，气泡头在径向方向膨胀，气泡头部呈现椭圆形，而由于头部径向方向体积的增大，速度也降低。膨胀的气泡头部使流体部分受阻，产生了积压。当气泡颈部产生后，积压在轴向方向上挤压气泡头颈部，在径向方向上拉伸气泡，同时在粘性应力作用下，气泡向径向方向发展，当满足 Rayleigh-Plateau 不稳定条件时候（长度大于截面周长），气泡被夹断，产生两个气泡。

实验发现对于牛顿流体中的气泡，并没有发生机理 2 类型的气泡聚并。说明连续流体的流变性质对气泡在突扩部分进口行为产生影响。PAAm 溶液有剪切变稀的特性，突扩部分宽度增大，流体体积流量一定情况下，剪切速率变小，气泡更容易在径向发展，产生的积压更大，积压对气泡头径向的拉伸力和轴向的挤压力越大，气泡越容易被夹断。

4.4.3 结论

本节研究了含突扩结构的微通道内气泡的流动行为。微装置内的收集部分通常为这种结构。

对于牛顿流体，如果表面张力比较大，气泡在突扩部分很容易聚并；随着表面张力的减小，聚并概率大大降低，气泡通常聚集在突扩收集部分。本文列举了气泡在牛顿流体中聚并的两个例子，可以定量的观测气泡聚并过程。

对于气泡在非牛顿流体中的行为，实验发现，气泡在突扩部分通常呈一排向下游发展。本文列举了气泡聚并的几个典型例子。并研究了气泡发生的概率。定量研究了气泡的聚并时间和聚并位置之间的关系，聚并时间随着聚并位置的增大而增大。定量研究了聚并时间和两相连气泡之间距离的关系，实验发现聚并时间随着两相连气泡之间的距离的减小而减小。同时测量了突扩部分内气泡周围流场的变化情况，实验发现，流动着的流体不是聚并产生的主要因素，而气泡之间形成液膜“桥”的发展和其所受的力为气泡聚并过程的主要控制因素。实验观测到两种不同的聚并机理，随着气液流量的变化，机理之间相互转换。

4.5 气泡在含有环形结构微通道内的流动行为

这一节研究了气泡在复杂微通道（D1）内的流动行为，这种微通道含有一个环形：流体被一个 T 分岔口分为两份，然后又在一个 T 接触口汇合流向出口（图 4-81）。本节研究了 T 分岔处气泡分裂以及不分裂的条件；分裂生成气泡的大小；气泡在 T 型汇合口的流动行为及成对气泡的生成等。考察了连续相流体的物理性质对气泡在 T 分岔处以及汇合口的流动特性的影响。用 micro-PIV 研究气泡周围流场的变化情况；首次发现了在低毛细管数情况下，较长气泡阻塞流体，液体内积压为气泡断裂主要控制力，并研究了这种情况下气泡断裂的动态过程；首次研究了气泡在分岔口出口成对行为。

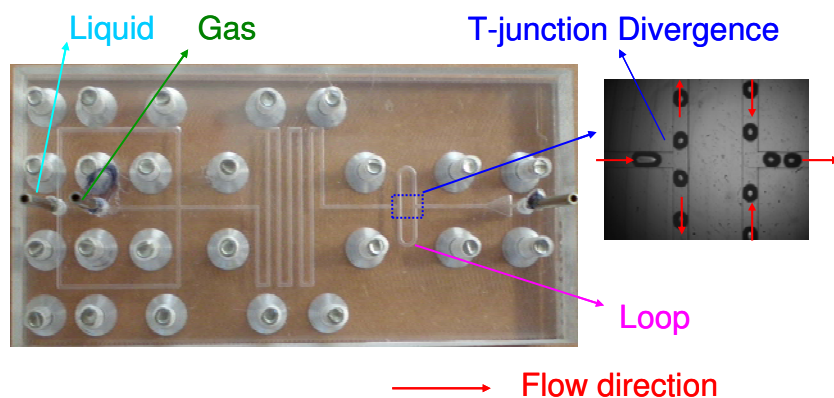


图 4-81 复杂微通道内流体流动示意图

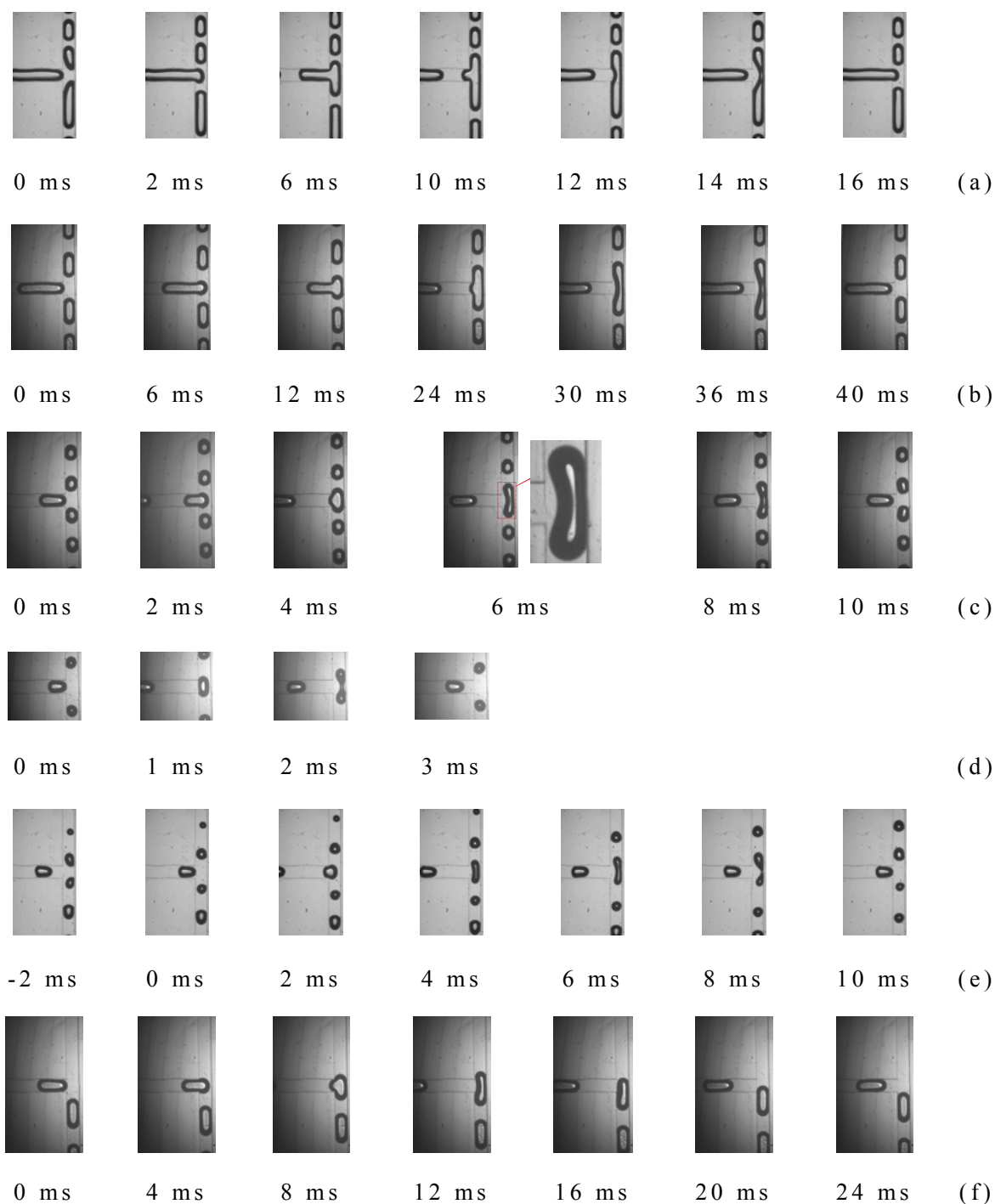
Fig 4-81 Schetch of the experiment: N2 bubbles were formed in a microfluidic flow-focusing junction and moved toward a loop with a T-junction divergence

4.5.1 气泡在 T 分岔口不同行为

根据已见报道的文献^[101]，从几何学意义上，把气泡在 T 型分岔口的行为按两类划分：阻塞的（obstructed）和未被阻塞的（non-obstructed）液体情况下的气泡行为。阻塞情况下气泡接触 T 型分岔口的管壁，例如气泡和墙壁之间的距离小于光学分辨率。未被阻塞的情况下，气泡与管壁之间有可见的空隙（a visible gap or

tunnel)。这种划分是纯几何的划分，因为管道的截面为方形，而气泡的截面为圆形、方形等（与毛细管数有关），气泡与管壁以及管道角之间的部分仍然会有流体流过。

实验观测到的气泡在 T 分岔口的行为有六个（图 4-82）：



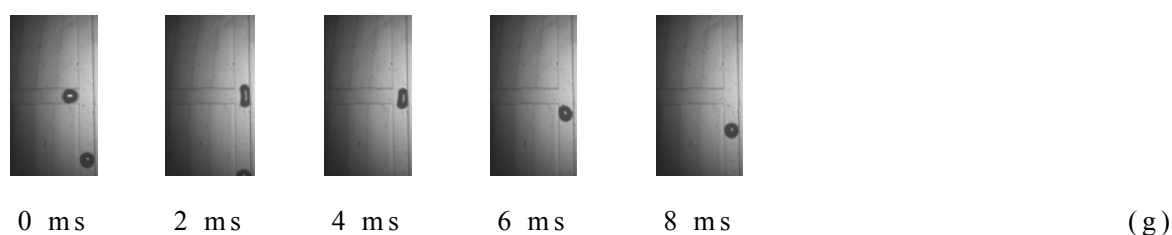


图 4-82 气泡在 T 型分岔口的流动行为

Fig. 4-82 Six regimes observed in the experiment for N_2 bubbles move across the T-junction. The bubbles move from the left to right along the horizontal channel. $400 \times 400 \mu\text{m}$ microfluidic device: (a) Breaking (asymmetric) with permanent obstruction (BA). $Q_g = 2006 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 570 \mu\text{L}/\text{min}$. Liquid phase: 25 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS; (b) Breaking (symmetric) with permanent obstruction (BS I). $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 300 \mu\text{L}/\text{min}$; (c) Breaking (symmetric) with partly obstruction (BS II). $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 1300 \mu\text{L}/\text{min}$; (d) Breaking (symmetric) with permanent gaps (BS III). $Q_g = 2006 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 4500 \mu\text{L}/\text{min}$; (e) Transition between breaking and non-breaking (TR). $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 1400 \mu\text{L}/\text{min}$. Liquid phase: 50 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS; (f) Non-breaking regime with partly obstruction (NB). $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 750 \mu\text{L}/\text{min}$; (g) Non-breaking regime with permanent gaps (NB). $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 4500 \mu\text{L}/\text{min}$. (b)-(d), (f)-(g) Liquid phase: 0.1 wt% SDS-water mixture

(1) 气泡破裂（非对称）类型（图 4-82a）(BA)：在较低的液体流速和较高的气体流速下，生成的气泡很长，在分岔口也一直阻塞液体，不过由于下游管道内压力降的关系，气泡在左右两分岔口内所占部分不一样，当积压大到一定值的时候，气泡破裂，破裂位置不在气泡中间位置。

(2) 气泡破裂（对称）类型 I (BS I)：液体受阻情况下的气泡破裂（图 4-82b）。这种情况出现在相对较低的流速下。气泡比较长，流经 T 型分岔口后，对称进入双岔道，始终与壁面接触，使流体受阻。气泡在 T 型分岔口产生一个弧形的颈部，并随时间缩小，最后在积压作用下产生两子气泡并分别经两分岔道流出。

(3) 气泡破裂（对称）类型 II (BS II)：气泡与墙壁面之间在某一时刻后出现空隙的破裂（图 4-82c）。这种情况出现在比较大的流速下，当气泡进入 T 分岔口的时候，对称进入双岔道分岔，并最

后破裂分为两部分分别从两分岔道流出。在相对比较低的速度下，气泡比较长，阻塞流体进入双岔道，这个过程气泡始终与壁面接触，受阻塞的流体产生了在 T 型分岔的入口积累了压力（产生了积压），使气泡在 T 分岔口处出现一个颈部，并在积压的法向作用下随时间变窄，气泡宽度也在积压的切向拉伸作用下变窄，某一个时刻后，气泡与壁面之间产生了空隙，最后气泡在剪切力和积压的切向力拉伸作用下破裂产生两子气泡分别从两分岔道流出；

（4）气泡破裂（对称）类型 III (BS III)：气泡与墙壁面之间始终有空隙的破裂。在相对比较高的速度下，气泡比较短，与壁面之间始终有空隙，在粘性剪切力作用下，气泡被拉伸至某一个值后，破裂产生两子气泡分别从双分岔道流出(图 4-82d)。

气泡在 T 型分岔口的对称破裂现象与液体在这种分岔口的流动现象非常类似^[101]。气泡的对称断裂位置基本都在其中间部位。还有以下几种现象：

（5）破裂与非破裂之间的转变区域（图 4-82e）(TR)：当液体流速介于使气泡破裂与非破裂时的流速中间值的时候，气泡破裂情况不稳定，属于破裂与非破裂的过渡区域。

（6）不破裂类型（图 4-82f-g）(NB)。当气泡运动到 T 型分岔口的时候，以较低的速度进入分岔口，然后在随机扰动作用下，流入 T 型双岔道口其中的一个。这种类型的气泡又可以分为两种情况：在较低速度下，气泡比较长，阻塞流体，进入 T 型双岔道，这个过程气泡始终与壁面接触，然后在流体的作用下，岔道口一侧气泡与壁面先出现空隙，流体流过，气泡进入与之相反的另一个岔道口，并流出(图 4-82f)；在较高流速情况下，气泡比较短，进入岔道口后未能阻塞流体，与壁面之间始终有空隙，并在进入岔道口后就迅速分岔进入双岔道之一(图 4-82g)。

图 4-83 显示了 T 型分岔口内气泡在含表面活性剂 SDS 0.5 wt% 的 25 wt%、50 wt% 及 62 wt% 甘油—水溶液中的流型图，横纵坐标分别为气液流速。从该图可以看出气泡随气液流量的变化呈现出来的不同的流动现象，而且气泡不同流动现象的转变还受流体粘度的影响。接下来，将具体介绍气泡破裂以及非破裂等情况的发生机理以及相互转化的条件。对于每一种液体，均通过改变气液流量得到类似图 4-83 示的流型图，液体流量不同，各种现象之间的转变不同。但是最后可以用无量纲数来表示它们之间的转变条件。在实际应用

中，对于每一种流体，均可以通过改变气液两相流的流量，得到流型图，然后，根据实际的需要，选择具体在哪个范围内操作。

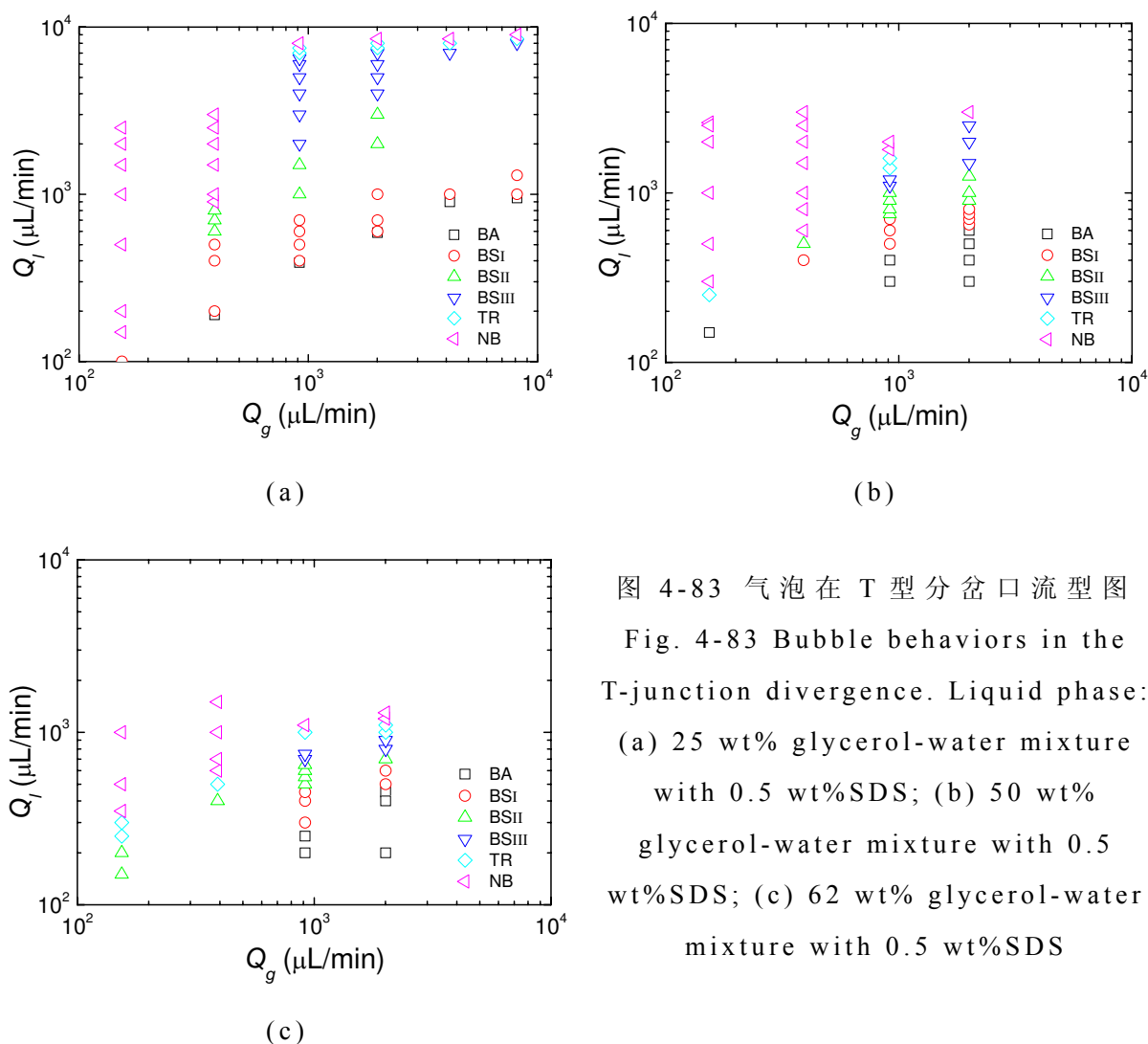


图 4-83 气泡在 T 型分岔口流型图
Fig. 4-83 Bubble behaviors in the T-junction divergence. Liquid phase: (a) 25 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS; (b) 50 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS; (c) 62 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS

4.5.2 气泡破裂（对称）类型 I (BS I)

图 4-84 显示了气泡破裂（对称）类型 I 的一个具体例子。将气泡正好在分岔管道内伸展到与管道平行的时候设为零时刻。然后一直到气泡破裂为止。这种类型的气泡破裂可以概括为：气泡进入分岔口后（图 4-84a），基本使液体完全阻塞（当然，由于表面张力作用，气泡呈圆柱体，气泡与管道角落部分的空隙内应该还是有流体流过的），液体内产生了积压。积压挤压气泡，气泡在 T 分岔口形

成一个颈部，并使气泡伸展（图 4-84b-d）。积压在颈部法线方向（即与主管道平行的方向）上使颈部变细，在颈部切线方向上拉伸气泡使之变长。气泡最终破裂分成两个气泡。形成的气泡由于流体的作用产生变形（图 4-84e），气泡尾部呈不对称的尖状，而且尖部贴近管道壁面。由于表面张力的作用，气泡尾部经过一段时间后，收缩成半球形（图 4-84f），并流向下游。

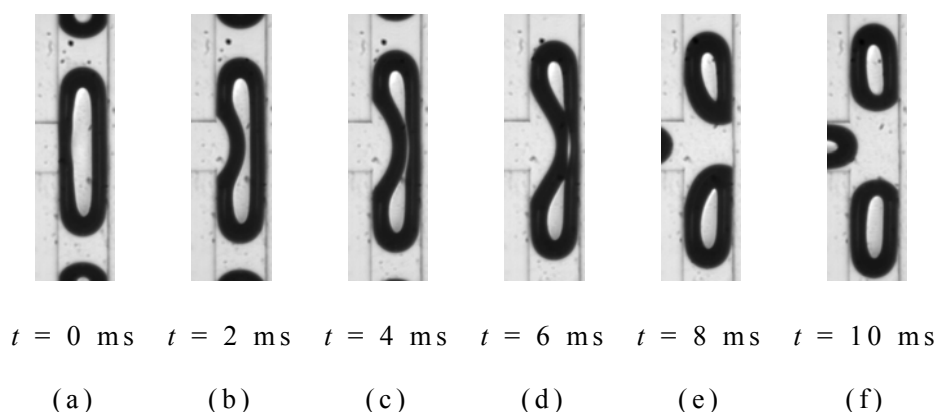


图 4-84 气泡破裂（对称）类型 I 的断裂过程图

Fig. 4-84 Micrographs of the evolution of bubble breaking in BS I in the microfluidic T-junction. Liquid phase: 62 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS. $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 300 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 3.52$, $Ca = 0.01$, $Re = 1.42$

图 4-85 显示了气泡在 T 型分岔口断裂过程中的特征量：气泡两端长度之半 $L_t/2$ ，气泡颈部最小宽度 δ 。

图 4-86a-b 分别显示了气泡颈部最小宽度 δ 以及气泡两端长度之半 $L_t/2$ 随时间的变化图。从该图可以看出，气泡两端长度之半 $L_t/2$ 以及气泡颈部最小宽度 δ 均随时间呈线性发展。经分析，这两个特征数与时间变化规律可以分别表示为： $L_t/2w_c = 0.28ut/w_c + L/2w_c$ ； $\delta/w_c = -0.28ut/w_c + 1$ ，其中 $u = u_g + u_l = (Q_g + Q_l)/w_c^2$ ，表示 T 型分岔口来流的速度。从表达式可以看出，气泡断裂过程的伸展速度和颈部的减小速度均与来流速度呈正比，说明气泡断裂过程由流体的速度控制。这可以用积压原理来解释。气泡使流体受阻，流体内产生的积压驱动气泡伸展变细，并最终使气泡破裂。

本文考察了气液流速、液体粘度对这一过程的影响，见图 4-87

示。该图中，对各个数量作了无量纲化处理，对于长度量，均除以管道的宽度得到 $L_t/2w_c$, δ/w_c ；对于时间，用气液流体以总的表观速度经过与管道宽度相等距离的时间进行无量纲化处理得到 ut/w_c 。该图中，气泡从零时刻到破裂的无量纲时间基本上都在 $0 < ut/w_c < 2$ 范围内。

图 4-87a-b 说明气泡破裂过程受来流速度控制，无量纲化的气泡颈部最小宽度 δ/w_c 随无量纲化的时间 ut/w_c 增大而减小；无量纲化的气泡两端长度之半 $L_t/2w_c$ 与 ut/w_c 呈正比。对于特定的流体， δ/w_c 及 $L_t/2w_c$ 与无量纲化的时间 ut/w_c 比例系数一定。

图 4-87c-d 显示了流体的性质对无量纲化的气泡颈部最小宽度 δ/w_c 以及气泡两端长度之半 $L_t/2w_c$ 的影响。无量纲化的气泡颈部最小宽度 δ/w_c 随时间 ut/w_c 的变化过程基本不受流体物性的影响。无量纲化的气泡两端长度之半 $L_t/2w_c$ 与 ut/w_c 的比例系数随流体粘度的增大略有减小。

无量纲化的气泡特征参数与时间的比例系数在图 4-88a-b 中显示了出来。该图对特征参数和时间的关系进行了处理，图 4-88a 中清楚地显示了 $(w_c - \delta)/w_c \sim ut/w_c$ 的比例系数为 0.30。图 4-88b 显示了 $(L_t - L)/2w_c \sim ut/w_c$ 的比例系数随流体粘度的不同而不同，对于含 0.5 wt% SDS 的 25 wt%、50 wt%、62 wt% 甘油-水溶液分别为 0.42, 0.30, 0.24。这可能是由于气泡和管道之间存在液膜，流体粘度越大，在其他条件相同的情况下，惯性力越小，流体在气泡颈部切线方向上使气泡拉伸作用减小，气泡伸展速度减慢。

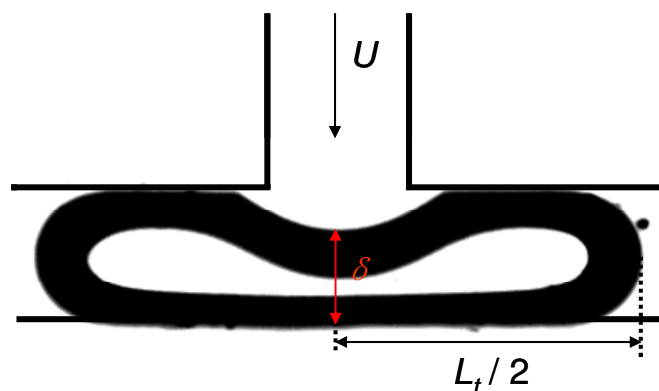


图 4-85 气泡破裂（对称）类型 I 的特征参数示意图

Fig. 4-85 Sketch of the shape of a bubble arriving at the T-junction and definitions of the two quantities used in the present study to characterize the bubble breaking procedure in the regime of breaking with gaps: $L_t/2$, δ . $L_t/2$ is the half length of the bubble; δ is the thickness of the bubble neck in the T-junction

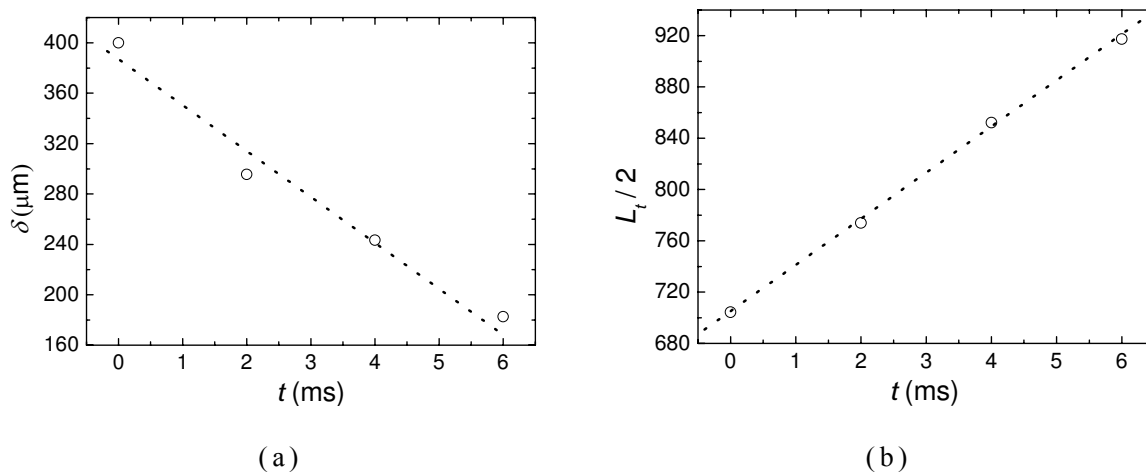


图 4-86 气泡破裂（对称）类型 I 断裂过程的特征参数演变图

Fig. 4-86 (a)-(b) Temporal evolution of the quantities for the bubble during the breaking procedure. Liquid phase: 62 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS. $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 300 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 3.52$, $Ca = 0.01$, $Re = 1.42$

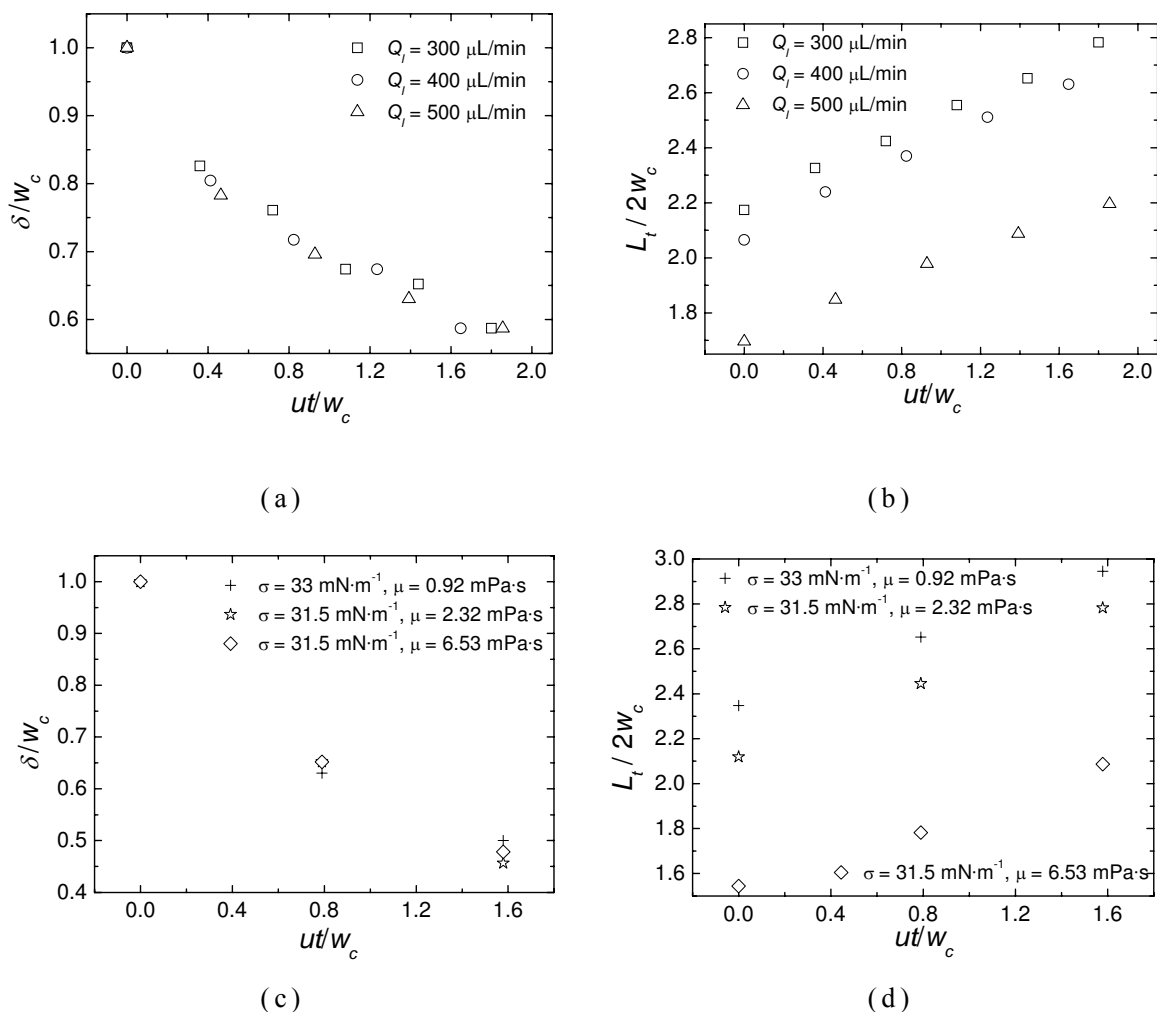


图 4-87 操作参数对气泡破裂（对称）类型 I 断裂过程中各特征参数的影响

Fig. 4-87 (a)-(d) Evolution of the bubbles as a function of ut/w_c under different conditions. (a), (c) δ/w_c ; (b), (d) $L_t/2w_c$. (a)-(b): 0.1 wt% SDS, $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, (\square) $Q_l = 300 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 4.35$, $Ca = 0.00074$, $Re = 13.59$. (\circ) $Q_l = 400 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 4.13$, $Ca = 0.00098$, $Re = 18.12$. (\triangle) $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 3.39$, $Ca = 0.0012$, $Re = 22.64$. (c)-(d): $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 600 \mu\text{L}/\text{min}$, (+) 0.5 wt% SDS, $L/w_c = 4.7$, $Ca = 0.0017$, $Re = 27.17$. (\star) 25 wt% glycerol, $L/w_c = 4.24$, $Ca = 0.0046$, $Re = 11.42$. (\diamond) 50 wt% glycerol, $L/w_c = 3.09$, $Ca = 0.013$, $Re = 4.33$

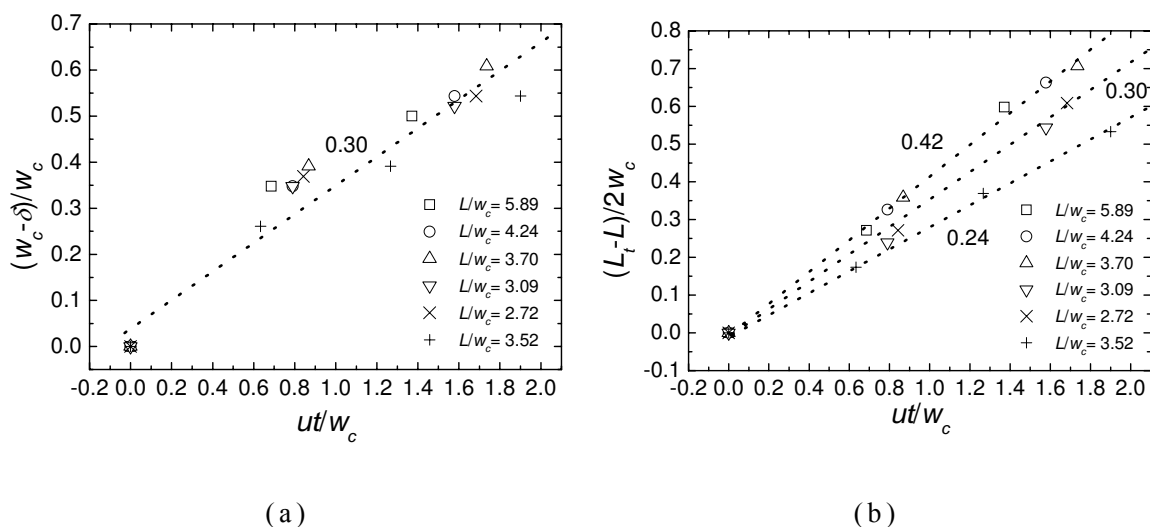


图 4-88 气泡破裂（对称）类型 I 断裂过程中的特征参数与无量纲时间的相似率

Fig. 4-88 (a)-(b) Scaling of the evolution of the bubbles as a function of ut/w_c under different conditions. (a) $(w_c - \delta)/w_c \sim ut/w_c$; (b) $(L_t - L)/2w_c \sim ut/w_c$. (\square) 25 wt% glycerol, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 400 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 5.89$, $Ca = 0.0031$, $Re = 7.61$. (\circ) 25 wt% glycerol, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 600 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 4.24$, $Ca = 0.0046$, $Re = 11.42$. (\triangle) 25 wt% glycerol, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 750 \mu\text{L}/\text{min}$, $L/w_c = 3.70$, $Ca = 0.0058$, $Re = 14.28$. (∇) 50 wt% glycerol, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 600 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 3.09$, $Ca = 0.013$, $Re = 4.33$. (\times) 50 wt% glycerol, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 700 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 2.72$, $Ca = 0.015$, $Re = 5.05$. ($+$) 62 wt% glycerol, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 300 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 3.52$, $Ca = 0.010$, $Re = 1.42$

4.5.3 气泡破裂（对称）类型 II (BS II)

图 4-89 显示了气泡破裂（对称）类型 II 的一个具体例子。将气泡正好在分岔管道内伸展到与管道平行的时候设为零时刻。然后一直到记录气泡破裂为止。这种类型的气泡破裂可以概括为两个阶段：（1）从气泡使流体完全受阻到气泡与管道之间出现空隙为第一个阶段（图 4-89a-c）。气泡进入分岔口后，基本使液体完全阻塞（当然，由于表面张力作用，气泡呈圆柱体，气泡与管道角落部分空隙内应该还是有流体流过的），液体产生了积压，积压挤压气泡使之伸展。积压挤压气泡，气泡在 T 分岔口形成一个颈部。积压在

颈部法线方向（即与主管道平行的方向）上使颈部变细，在颈部切线方向上拉伸气泡使之变长。发展到一定时期，气泡头与管道壁面之间出现空隙，进入下一阶段。在这一阶段，液体的惯性力也起一定的作用。（2）从气泡出现空隙一直到气泡最终破裂为第二个阶段（图 4-89c-g）。气泡出现空隙后，液体内积压变小。液体对气泡的剪切力以及惯性力同时也起一定的作用：剪切力和惯性力在颈部切线方向上继续拉伸气泡使之变长；惯性力在颈部法线方向上使颈部继续变细直到最终破裂。如果积压存在，也对气泡的变细和伸展起一定的作用。在整个过程中，表面张力是唯一的阻止气泡破裂的力。

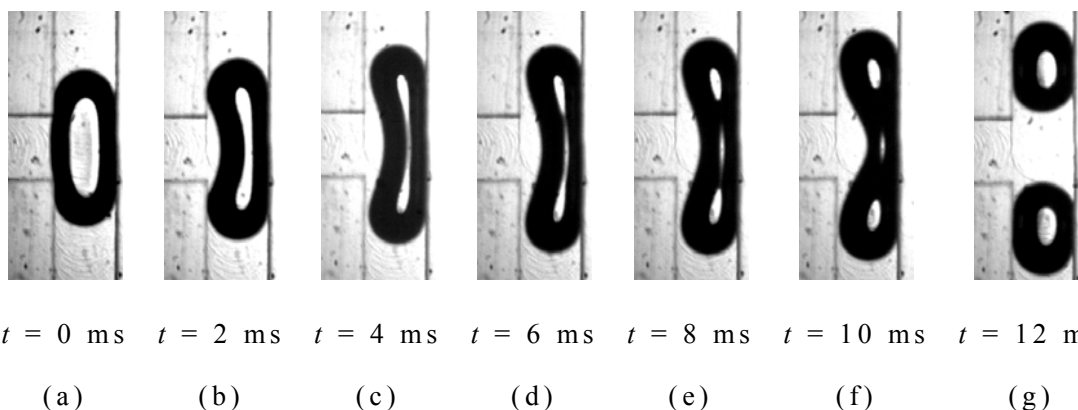


图 4-89 气泡破裂（对称）类型 II 的过程图

Fig. 4-89 Micrographs of the evolution of bubble breaking in BSII in the microfluidic T-junction. Liquid phase: 25 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS. $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 700 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 2.54$, $Ca = 0.0054$, $Re = 13.33$

图 4-90a 显示了气泡在 T 型分岔口破裂过程中的特征量：气泡两端长度之半 $L_i/2$ ，气泡颈部最小宽度 δ ，气泡头与管壁之间的距离 d 。图 4-90b-d 分别显示了气泡颈部最小宽度 δ 、气泡头与管壁之间空隙的宽度 d 以及气泡两端长度之半 $L_i/2$ 随时间的变化图。

从图中可以看出，气泡颈部的最小宽度 δ 在两个阶段随时间减小的规律不一样（图 4-90b）：在第一阶段，呈线性减小；在第二阶段，呈指数减小。第二阶段气泡颈部的减小速率比第一阶段大。在第一阶段，受阻流体内的积压使气泡变细，颈部变细的速度与流体的速度呈正比，亦恒定；在第二阶段，惯性力以及剪切力为驱动气

泡继续伸展乃至破裂的主要的力，所以变细速度要比前一阶段快，呈指数减小。第一阶段和第二阶段气泡颈部的最小宽度 δ 的临界值大约为 $260 \mu\text{m}$ 。

从图 4-90c 可以看出，气泡头与管壁之间空隙的宽度 d 由零逐渐增大到某一时刻后又逐渐变小。在刚开始的时候，气泡阻塞在分岔口，上游管道内的惯性力以及挤压力还不足以在短时间内使气泡拉伸变细。经过一段时间后，在惯性力和挤压力的作用下，气泡被拉伸并变细，气泡头部与管壁出现空隙，这个时候，气泡在管道的轴向和径向受到的力相当，所以空隙增大。当到达某一时刻后，气泡颈部的缩短速度要大于其长度的增长速度，所以气泡头部在分岔管道径向方向上会有一定程度的膨胀，使得头部与管壁之间空隙变小，直到气泡最后破裂。

从图 4-90d 显示了气泡两端长度随时间的变化规律。气泡的伸展速度在第二阶段比第一阶段小。由于气泡体积一定，在第二阶段，气泡与管道壁面之间空隙的宽度 d 减小（图 4-90c），说明气泡在管道径向方向上也有一定的膨胀，从而气泡长度在轴向方向的增长速度减慢。

图 4-91a-c 提供了在不同操作条件下气泡经过 T 型分岔口的各特征量的变化规律。该图中，对各个数量作了无量纲处理，对于长度量，均除以管道的宽度得到 $L_t/2w_c$, δ/w_c , d/w_c ；对于时间，用气液流体以总的表观速度经过与管道宽度相等距离的时间进行无量纲处理得到 ut/w_c ，其中 $u = u_g + u_l = (Q_g + Q_l)/w_c^2$ 。该图面，气泡从零时刻到破裂的无量纲时间基本上都在 $0 < ut/w_c < 3.5$ 范围内。

图 4-91a 表明了气泡断裂的两个阶段其颈部最小宽度 δ/w_c 速度变化规律不同，第一阶段为线性减小，第二阶段呈指数减小。第一阶段和第二阶段发生转变时刻大致为 $ut/w_c = 1.25$ ，而这个时刻的气泡颈部最小距离为 $\delta/w_c = 0.625$ 。气泡断裂时刻一般发生在 $0.3 < \delta/w_c < 0.4$ ，进一步分析数据发现，存在一个气泡颈部最小距离的临界断裂值： $\delta/w_c = 0.32$ 。对于液滴在 T 型分岔口的断裂，文献中也报道了存在临界值的现象^[101, 111]。Leshansky 等^[111]用 2D 模型得到的临界值为 $\delta/w_c = 0.5$ ，而 Jullien 等^[101]实验得到的临界值为 $\delta/w_c = 0.3$ 。不同的数值说明该临界值与两相系统、微通道结构和尺寸也有一定的关系。

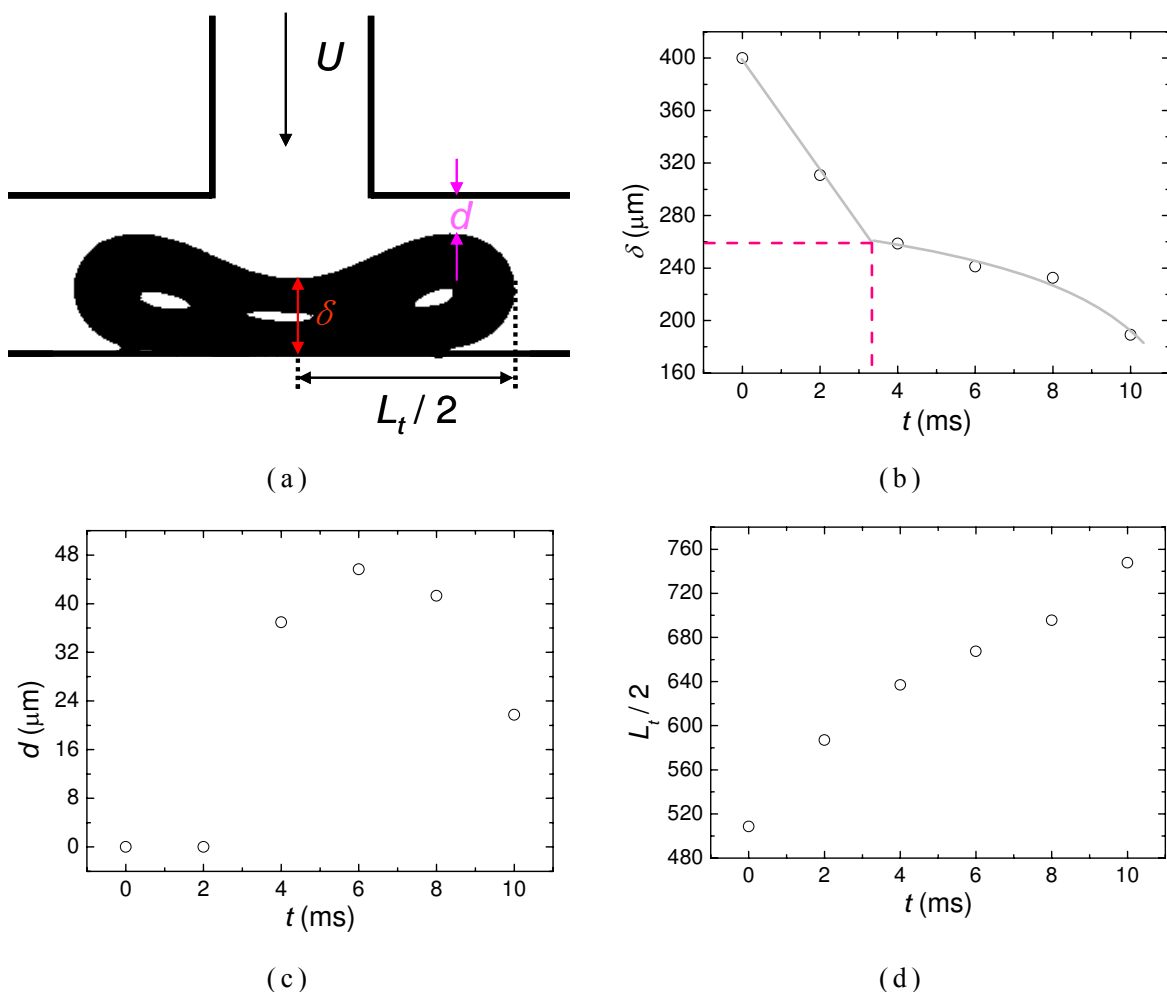


图 4-90 气泡破裂（对称）类型 II 的特征参数示意图及演变图

Fig. 4-90 (a) Sketch of the shape of a bubble arriving at the T-junction and definitions of the three quantities used in the present study to characterize the bubble breaking procedure in the regime of breaking with gaps: $L_t/2$, δ , d ; (b)-(d) The temporal evolution of the quantities for the bubble during the breaking procedure. Liquid phase: 25 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS. $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 700 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 2.54$, $Ca = 0.0054$, $Re = 13.33$. $L_t/2$ is the half length of the bubble; δ is the thickness of the bubble neck in the T-junction; d is the minimum distance for the gap between the bubble and the wall in the entrance side

图 4-91a 还显示了颈部最小宽度 δ/w_c 受气液流量以及操作物系的影响：在第一阶段， δ/w_c 减小速率只受气液流量的影响；在第二阶段 δ/w_c 呈指数减小的速率受气液流量和操作物系的影响，雷诺数

Re 越大, δ/w_c 减小得越慢, 毛细管数 Ca 越大, δ/w_c 减小得越快。图 4-91d 显示了颈部最小宽度 δ 与破裂剩余时间 $(T-t)$ 的指数关系 $\delta \sim (T-t)^{0.33}$ 。

图 4-91b 显示了气泡头与管壁之间空隙的宽度 d/w_c 的变化规律: 先增大后减小, 其最大值出现时刻在 $ut/w_c = 1.7$ 左右。气泡与管壁之间开口后, 由于流体惯性力的作用, 空隙会继续变大至最大值, 而当气泡颈部的夹断速度增大后, 空隙又会慢慢变窄, 该过程受流体流量以及流体物性的影响比较大。该图也显示了存在一个气泡破裂时的临界空隙宽度 $d/w_c = 0.05$ 。

图 4-91c 显示了无量纲化的气泡两端长度之半 $L_t/2w_c$ 的变化规律: 在较小的流体粘度, 较大的雷诺数的时候, 其第一阶段的增长速度比第二阶段的大; 当流体粘度比较大, 雷诺数比较小的时候, 其全程的增长速度几乎恒定。前者是因为惯性力较粘性力大, 第一阶段为积压刚释放阶段, 随着气泡与管壁之间空隙的增大, 流体的流出, 积压慢慢减小, 所以第二阶段的速度要相比第一阶段小一些。后者是因为粘性力与惯性力可比, 共同控制气泡长度的增长过程。在气泡增长过程中, 积压释放, 同时由于气泡伸展表面积增大而使粘性力增大, 两者总量很有可能没有多大的变化, 所以整个过程中气泡长度的增长速度是恒定的。

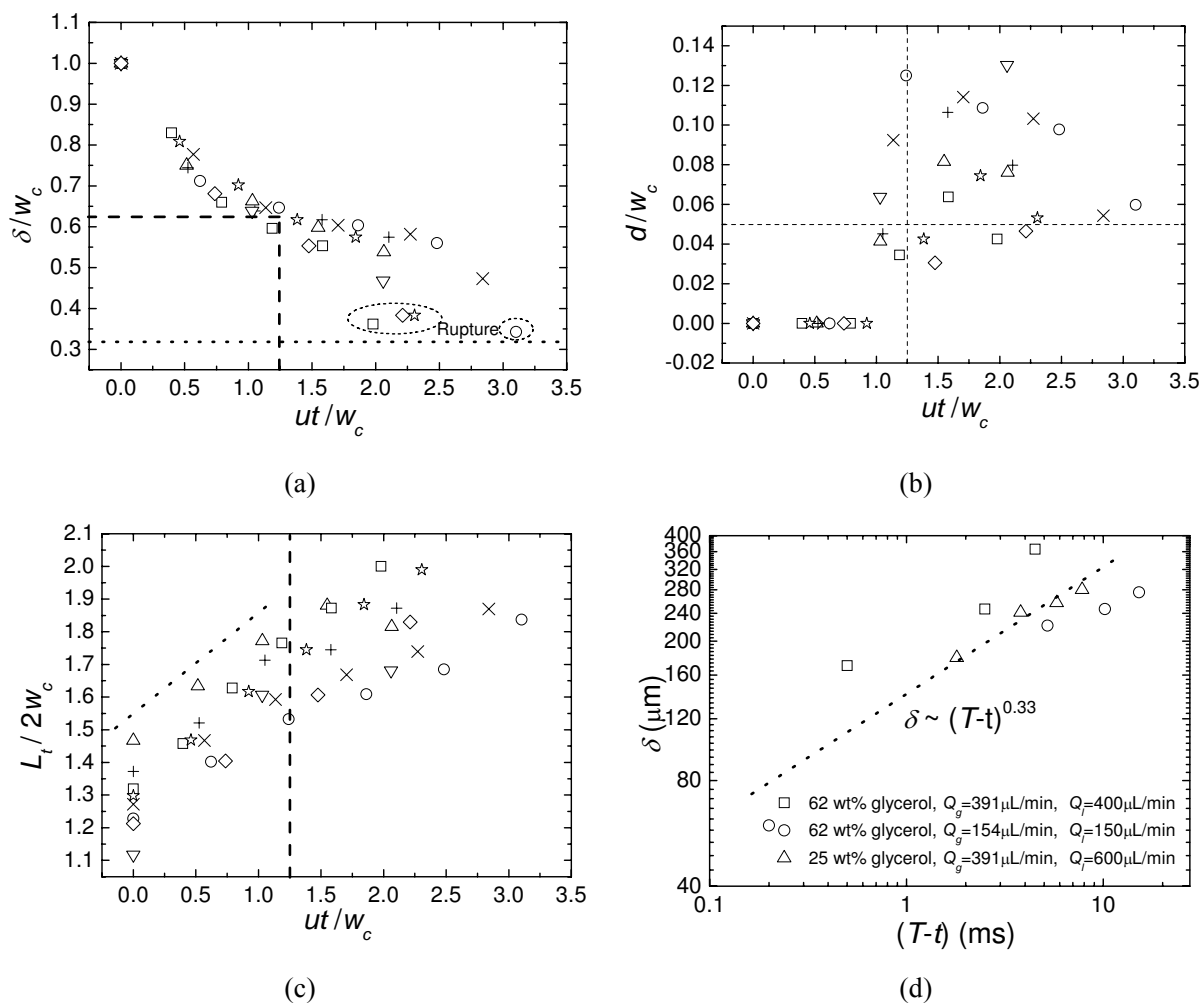
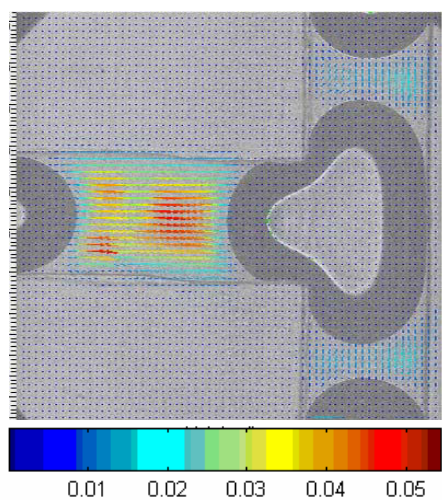


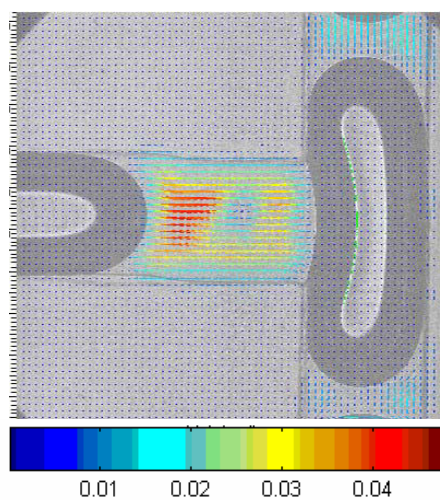
图 4-91 操作条件对气泡破裂（对称）类型 II 破裂过程的影响

Fig. 4-91 (a)-(c) Evolution of the bubbles as a function of ut/w_c under different conditions. (a) δ/w_c ; (b) d/w_c ; (c) $L_t/2w_c$. (Δ) 25 wt% glycerol, $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 600 \mu\text{L}/\text{min}$, $L/w_c = 2.93$, $Ca = 0.0046$, $Re = 11.42$. (\times) 25 wt% glycerol, $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 700 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 2.54$, $Ca = 0.0054$, $Re = 13.33$. (\circ) 25 wt% glycerol, $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 800 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 2.46$, $Ca = 0.0061$, $Re = 15.23$. ($+$) 50 wt% glycerol, $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 250 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 2.74$, $Ca = 0.0054$, $Re = 1.80$. (\square) 62 wt% glycerol, $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 150 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 2.64$, $Ca = 0.0051$, $Re = 0.71$. (\star) 62 wt% glycerol, $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 150 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 2.60$, $Ca = 0.0067$, $Re = 0.95$. (∇) 25 wt% glycerol, $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 400 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 2.23$, $Ca = 0.013$, $Re = 1.90$. (\diamond) 25 wt% glycerol, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 500 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 2.43$, $Ca = 0.017$, $Re = 2.37$. (d) The relationship between the minimum width of the bubble neck δ and the remaining time to the final breakup of the bubble ($T-t$)

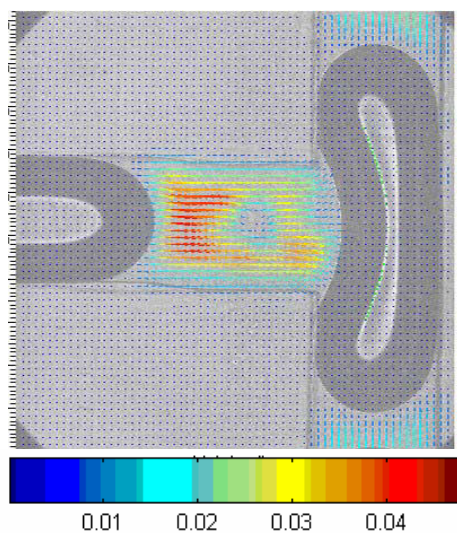
图 4-92 显示了气泡破裂（对称）类型 II (BS II) 区域内气泡破裂过程中周围流场的变化情况。图 4-92a-d 显示了气泡阻塞在 T 型分岔口，阻塞流体，受阻的流体内产生了积压，推动颈部发展，使其变细。在该过程中，颈部周围的流体内的速度方向主要为从颈部的法向方向流向颈部。图 4-92e-g 气泡头部和管道壁面之间出现空隙，液体在颈部分岔，一部分在颈部法线方向流向颈部，另一部分在颈部切线方向流向下游。图 4-92e-f 为释放积压阶段，颈部切向方向的流速变大，使气泡头与管壁之间空隙变大。图 4-92f-g 已经进入第二阶段，颈部宽度呈指数减小的阶段。图 4-92h 为气泡接近于破裂状态时周围流场的情况，可以看出，气泡与管壁之间的空隙减小，流体在颈部法线上的作用更大，几乎全部集中在颈部法线上，以突增的速度使气泡破裂。该图中流体速度并不是在气泡颈部法线方向上呈对称的，这可能是由于环形分岔出口汇集处气泡流出时（通常一前一后）改变了两分岔管道内的压力，为了维持暂时的平衡，气泡两头内压力也有差别，液体在分岔口的分岔速度由于下游压力的不同而产生了一定的差别。图 4-92i-j 为气泡破裂后，气泡尾部流场的变化情况，气泡破裂后，由于表面张力作用，尾部回缩至半球形。图 4-92i 表明气泡尾部在回缩过程中，周围流体一部分在空隙侧流过；另一部分流至另外一侧。



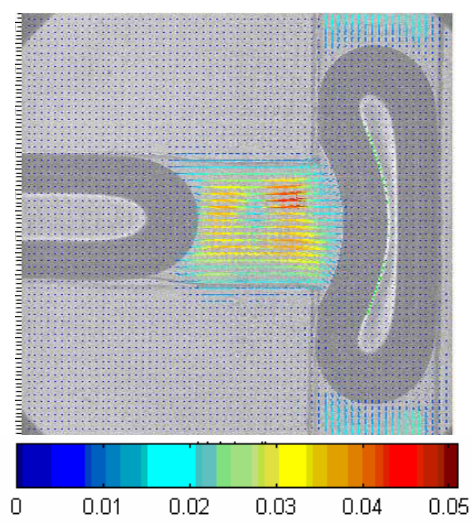
(a) $t-266.66\text{ms}$



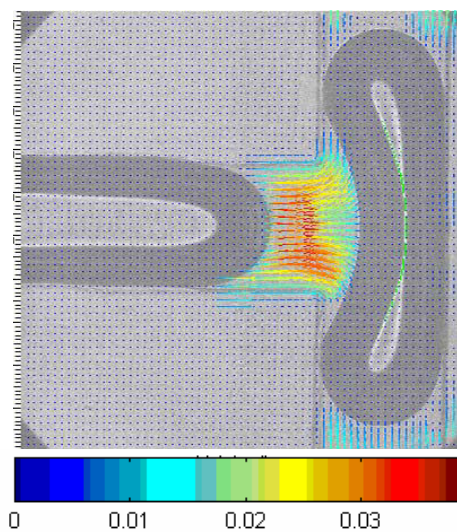
(b) t



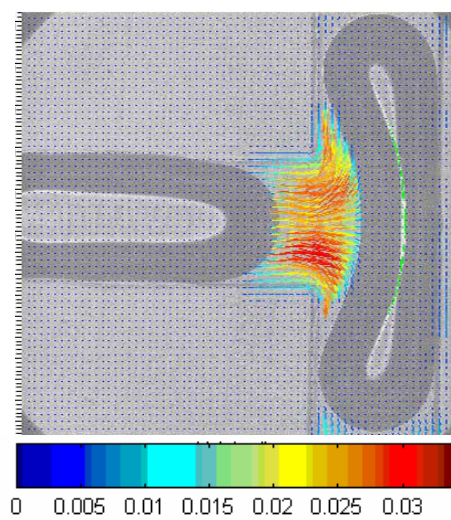
(c) $t+133.33\text{ms}$



(d) $t+266.66\text{ms}$



(e) $t+399.99\text{ms}$



(f) $t+533.32\text{ms}$

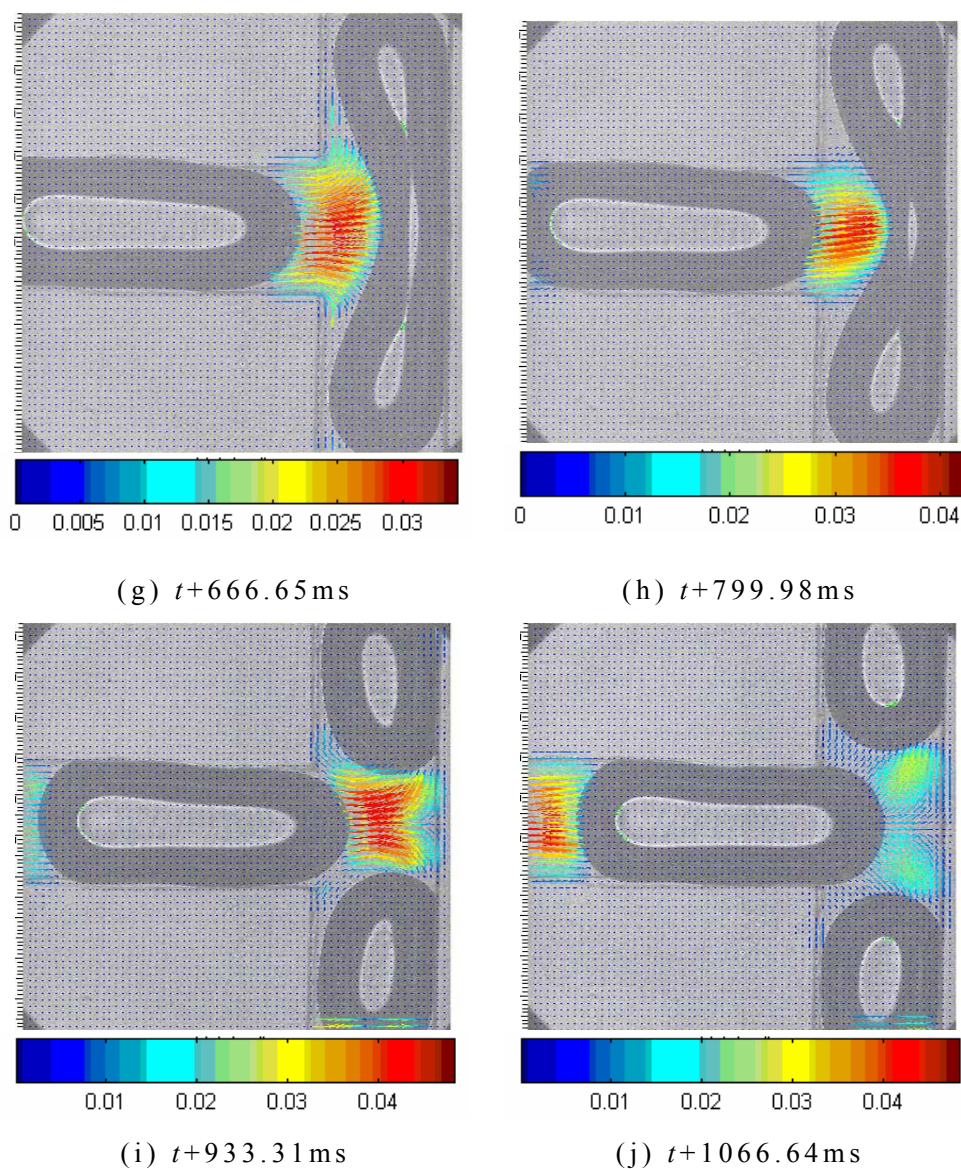


图 4-92 气泡破裂（对称）类型 II 区域内气泡破裂过程周围流场变化图

Fig. 4-92 Velocity distributions in the liquid phase around bubbles in the breaking regime (symmetric) II in the T-junction divergence. Liquid phase: 62 wt% Glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS. $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 150 \mu\text{L}/\text{min}$

4.5.4 气泡破裂（对称）类型 III (BS III)

图 4-93 显示了气泡破裂（对称）类型 III (BS III) 在破裂过程中各特征参数的变化规律。气泡从零时刻到破裂的无量纲时间基本上都在 $0 < ut/w_c < 2.5$ 范围内。该类型气泡的破裂只经历一个阶段。气泡头

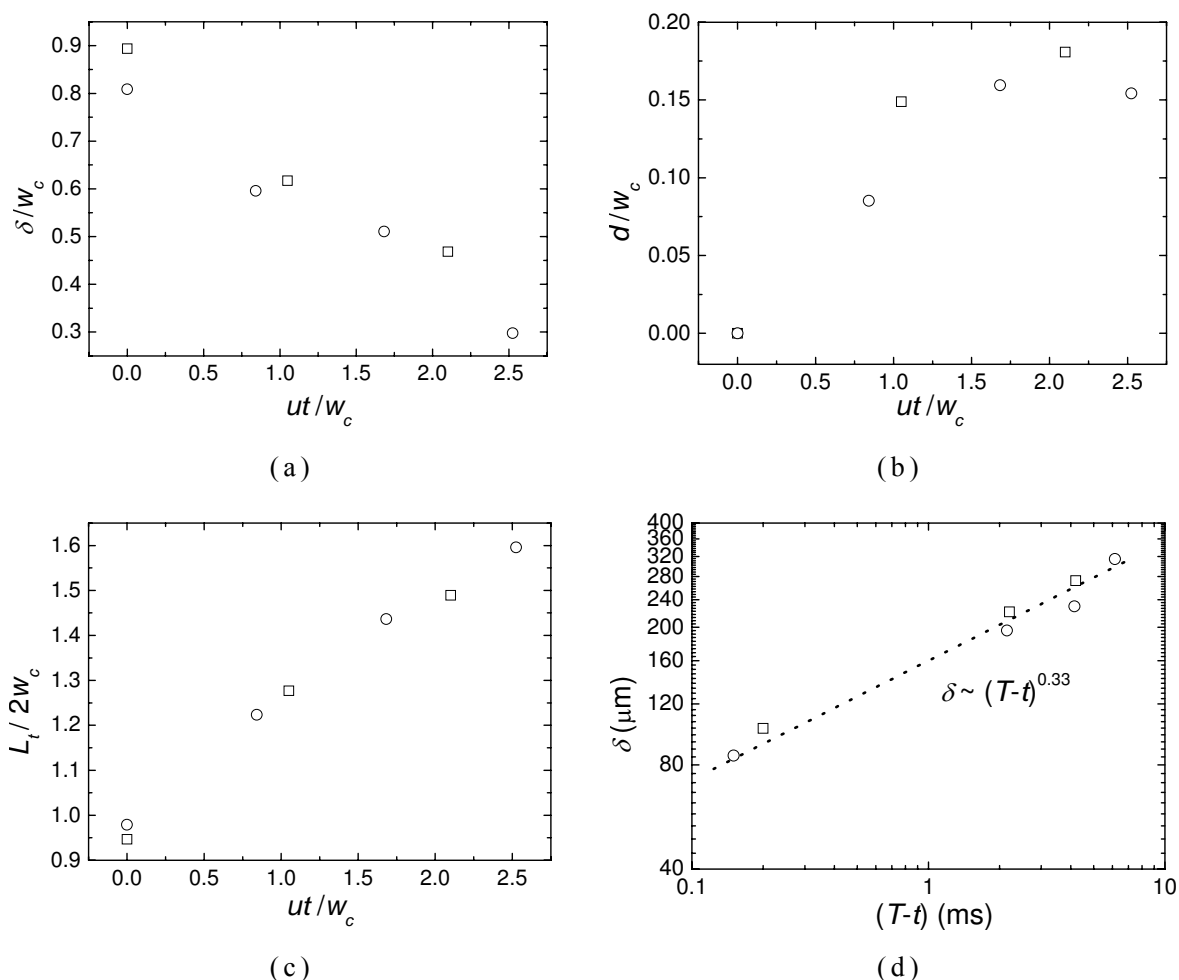


图 4-93 气泡破裂（对称）类型 III(BS III) 内气泡破裂过程

Fig. 4-93 (a)-(c) Evolution of the bubbles as a function of ut/w_c under different conditions: (a) δ/w_c ; (b) d/w_c ; (c) $L_t/2w_c$; (d) Relationship between the minimum width of the bubble neck δ and the remaining time to the final breakup of the bubble $(T-t)$. (\square) 50 wt% glycerol, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 1100 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 1.89$, $Ca = 0.024$, $Re = 7.93$. (\circ) 62 wt% glycerol, $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 700 \mu\text{L}/\text{min}$. $L/w_c = 1.96$, $Ca = 0.024$, $Re = 3.32$

部与管壁经历零时刻后就出现空隙。图 4-93a 表明颈部最小宽度 δ/w_c 呈指数减小，存在一个气泡颈部最小宽度的临界断裂值： $\delta/w_c = 0.30$ 。图 4-93d 显示了颈部最小宽度 δ 与破裂剩余时间 $(T-t)$ 的指数关系 $\delta \sim (T-t)^{0.33}$ ，说明这个过程中流体的惯性力控制气泡的最终破裂过程。图 4-93b 显示了气泡头与管壁之间空隙的宽度 d/w_c 的变化规律：先增大后减小，其最大值出现时刻在 $ut/w_c = 1.7$ 左右。该图也显示了存在一个气泡破裂时的临界空隙宽度 $d/w_c = 0.15$ 。图 4-93c

显示了无量纲化的气泡两端长度之半 $L_t/2w_c$ 的变化规律：其增长速度几乎恒定。

4.5.5 非破裂类型 (NB)

图 4-94 显示了不破裂类型气泡在 T 型分岔处流动过程中其周围流场的情况。

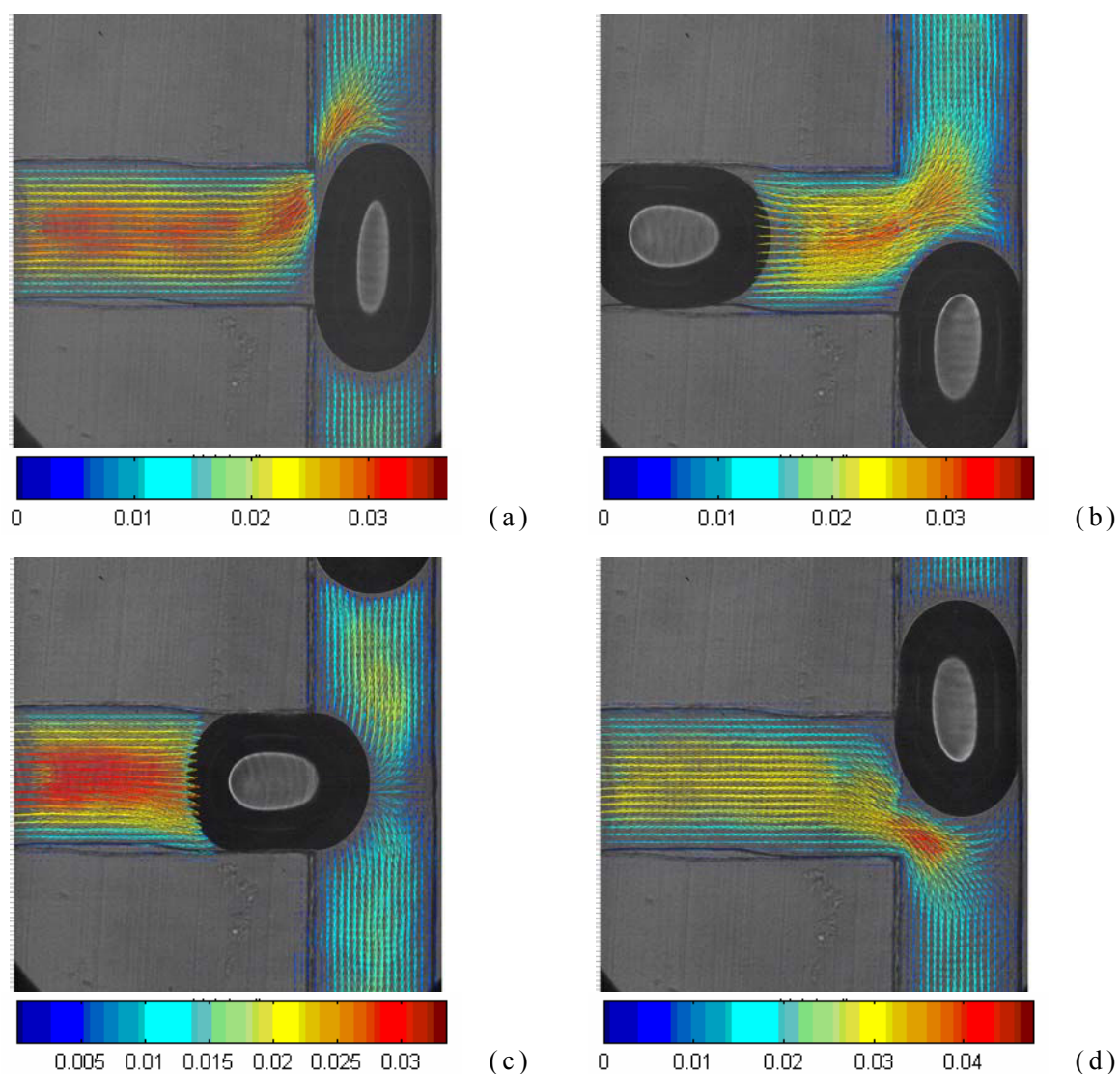


图 4-94 非破裂类型 (NB) 气泡周围流场分布

Fig. 4-94 Velocity distributions in the liquid phase around bubbles in the non-breaking regime in the T-junction divergence. Liquid phase: 62 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS. $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 150 \mu\text{L}/\text{min}$

图 4-94a-b 为气泡选择右侧分岔管流出。图 4-94a 显示气泡刚好全部进入岔道口时的情况：气泡阻塞在分岔口，使流体受阻，流体只能通过气泡与管壁之间的空隙流向下流，分岔口左侧空隙较大，使流体受阻影响小，所以在该部分液体的速度比较大，流体分岔到左侧的部分速度较大，在气泡头不远处，出现一个流体的分岔，在该点，液体一部分流向左侧，一部分流向气泡，并推动气泡前进至图 4-94b 位置。

图 4-94c-d 为气泡选择左侧分岔管流出的情况。气泡周围流场的情况与前种情况类似。从图 4-94c 可以看出，气泡在向分岔口扩展膨胀的过程中，气泡头部变大，由于表面张力的作用，平面结构呈现抛物型。气泡头部的液体对称地在分岔口一分为二，出现分岔现象，左侧流场的速度较右侧略大。这可能是由于分岔管道内气泡个数和位置的不同，使左右两侧的流体压力将不同，所以对流体的阻力不同，流场的分布也就略有差别。图 4-94c 还显示了，气泡头部和尾部的流场速度不同，尾部的速度要比头部的大，这可能是由于气泡头部膨胀，使周围液体速度降低；流体在分岔口一分为二也可能是原因之一。

气泡未满足破裂的条件，故在分岔处选择分岔之一流向下流。气泡的无量纲扩展数定义为：

$$\varepsilon = L/\pi w_b \quad (4-29)$$

为气泡的长度与截面周长的比值。

根据经典的 Rayleigh-Plateau 不稳定性理论，在剪切流中，当柱体流体细线的长度超过其截面周长（即 $\varepsilon > 1$ ）的时候，它自身破裂来减小其总的表面积。所以在毛细管数比较大的时候，即剪切应力比较大时候，如果气泡的无量纲扩展数小于 1，将选择分岔口其中之一流向出口^[102]。

也有研究者^[111]提出了 2D 模型，认为 Link 等^[102]运用毛细 Rayleigh-Plateau 不稳定性理论来解释液滴断裂的情况只发生在三维情况下，而对二维的情况不适用，并基于液滴的几何结构，用窄空隙内润湿分析理论提出了 2D 情况下有空隙伴随产生的液滴断裂和不断裂的临界条件与毛细管数相关：

$$L/w_c \sim Ca^{-0.21} \quad (4-30)$$

4.5.6 各类型之间的转变

图 4-95 显示了气泡在 T 型分岔口的不同断裂类型以及非断裂类型之间的转变条件。为了更直观地得到各转变条件，用毛细管数和气泡的无量纲长度作图 4-95^[101, 102, 111]。从图 4-95 知道，各个类型之间的转变线与毛细管数和气泡长度呈指数的关系。

断裂 (BS) 与非断裂 (NB) 之间的转变线方程为：

$$L/w_c = 0.11Ca^{-0.54} \quad (4-31)$$

断裂类型 I 与断裂类型 II 之间的转变线方程为：

$$L/w_c = 0.91Ca^{-0.21} \quad (4-32)$$

断裂类型 II 与断裂类型 III 之间的转变线方程为：

$$L/w_c = 0.51Ca^{-0.28} \quad (4-33)$$

图 4-95 的实验范围为低毛细管数情况，表面张力比剪切力要大很多，所以气泡破裂过程主要有管道结构、惯性力以及流体内积累的压力控制。

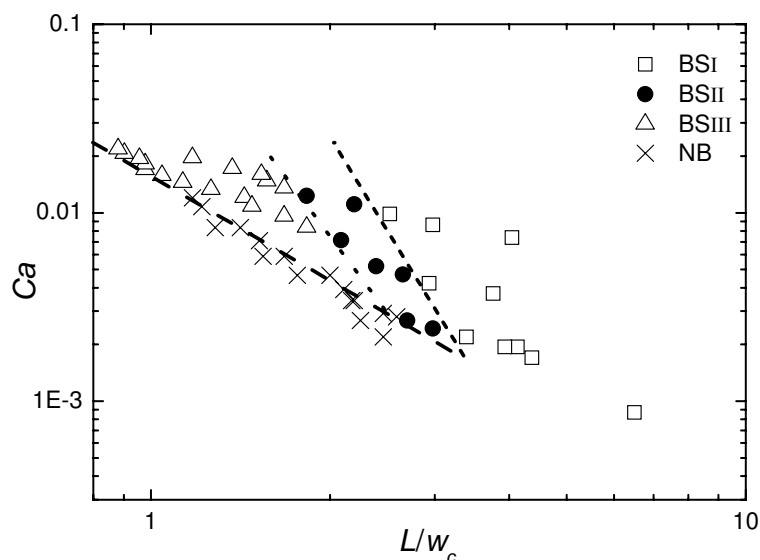


图 4-95 气泡破裂类型及非破裂类型之间的转变条件

Fig. 4-95 Transition for different bubble behaviors in the T-junction. Liquid phase: 0.1 wt% SDS

4.5.7 环路出口成对气泡的生成

气泡在 T 型分岔口断裂或者非断裂后，分别从分岔路两侧流向环路的出口，在出口处汇聚，在一定范围内成对流出。这种现象提供了一种成对气泡生成的方法（图 4-96）。由于 D1 装置内环路分岔两侧结构和尺寸一致，所以通常生成尺寸相等的成对气泡。

图 4-96 列出了成对气泡在 D1 装置内的环路出口生成过程系列图的一个实例。两气泡到达环路出口时候，由于气泡长度比管道宽度值大，由于流体的随机扰动引起分岔口两侧分流速度的微小差别将使某一气泡先通过出口，另一气泡经历短暂停留后跟随前一气泡流经出口，最后气泡成对流出。图 4-97 显示了成对气泡流经环路出口时周围流场的分布情况。两气泡到达出口，一气泡先探出头（图 4-97a）此时两气泡尾部的流场分布基本一致。经过一段时间后，前面的气泡尾部流速增大，加速了气泡流经出口过程（图 4-97b）。当后面的气泡也流出后，其尾部两侧流场又比较接近（图 4-97c）。

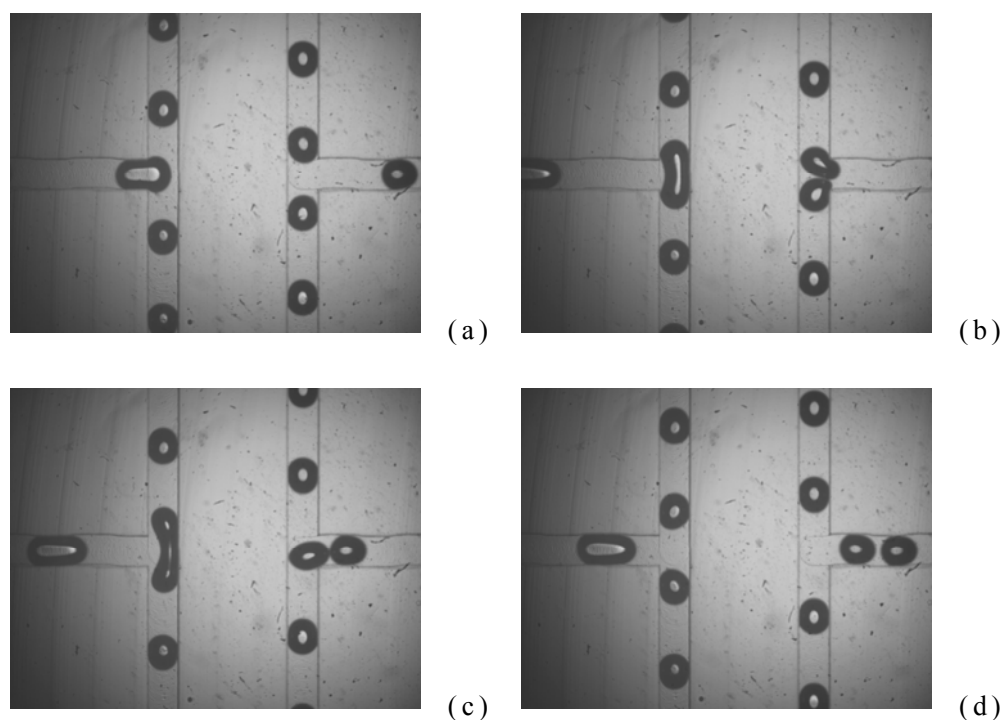


图 4-96 成对气泡生成过程图

Fig. 4-96 Pair bubbles formed at the outlet of the loop. Liquid phase: 0.1 wt% SDS. $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 2000 \mu\text{L}/\text{min}$. (a) t ; (b) $t + 2 \text{ ms}$; (c) $t + 4 \text{ ms}$; (d) $t + 6 \text{ ms}$

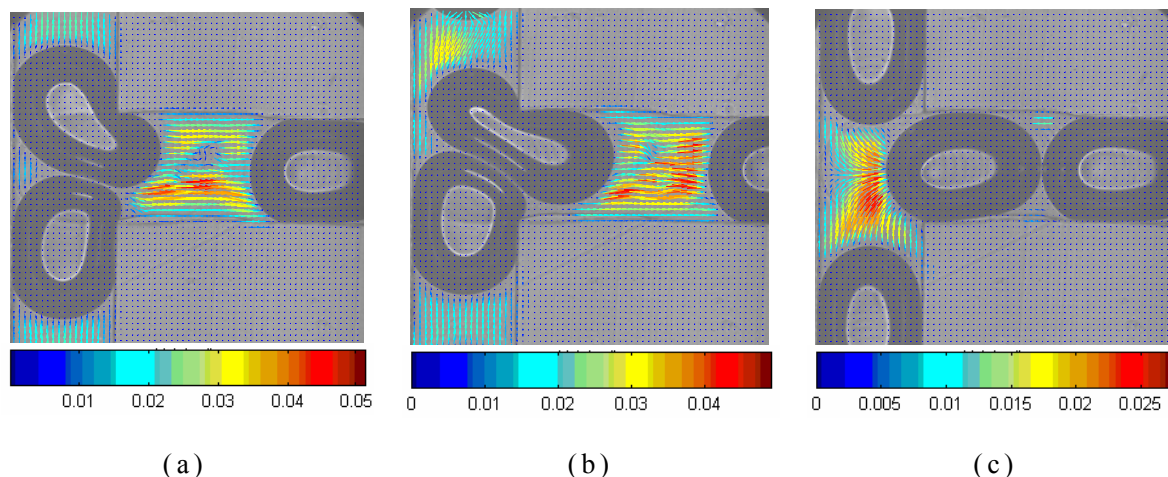


图 4-97 成对气泡流过环路出口时周围流场的情况

Fig. 4-97 Velocity distributions around the bubbles at the outlet of the loop.
Liquid phase: 62 wt% glycerol-water mixture with 0.5 wt% SDS. $Q_g = 391$
 $\mu\text{L}/\text{min}$, $Q_l = 150 \mu\text{L}/\text{min}$

图 4-98 显示了液体流速对生成成对气泡尺寸的影响。从图中可以看出，气泡尺寸随着液体流速的增大而减小。通过控制液体的流速，可以得到不同尺寸的成对气泡。这种现象可以通过单个气泡生成原理来解释。D1 装置内气泡的生成采用的是聚焦流生成装置，这种结构内气泡的生成的详细论述见前面章节，生成单个气泡的尺寸随着液体流量的增大而减小。气泡到达环路进口的时候，一旦满足气泡破裂的条件，将破裂分成两个相等的气泡分别从分岔的两侧流出，并最后汇集在环路的出口成对流出。本实验中雷诺数范围为： $20 < Re < 425$ ，毛细管数范围为 $0.001 < Ca < 0.02$ ，在该范围内，气泡在微通道内没有聚并发生，不论是在直管道内、带有弯角的管道还是在环路出口。即使气泡之间有接触（图 4-99），也不曾发现聚并现象。而对于液滴在类似装置内的流动过程，有聚并现象发生^[143]。这种不同可能是由于气液两相粘度比与液液两相粘度比相差很大所致。

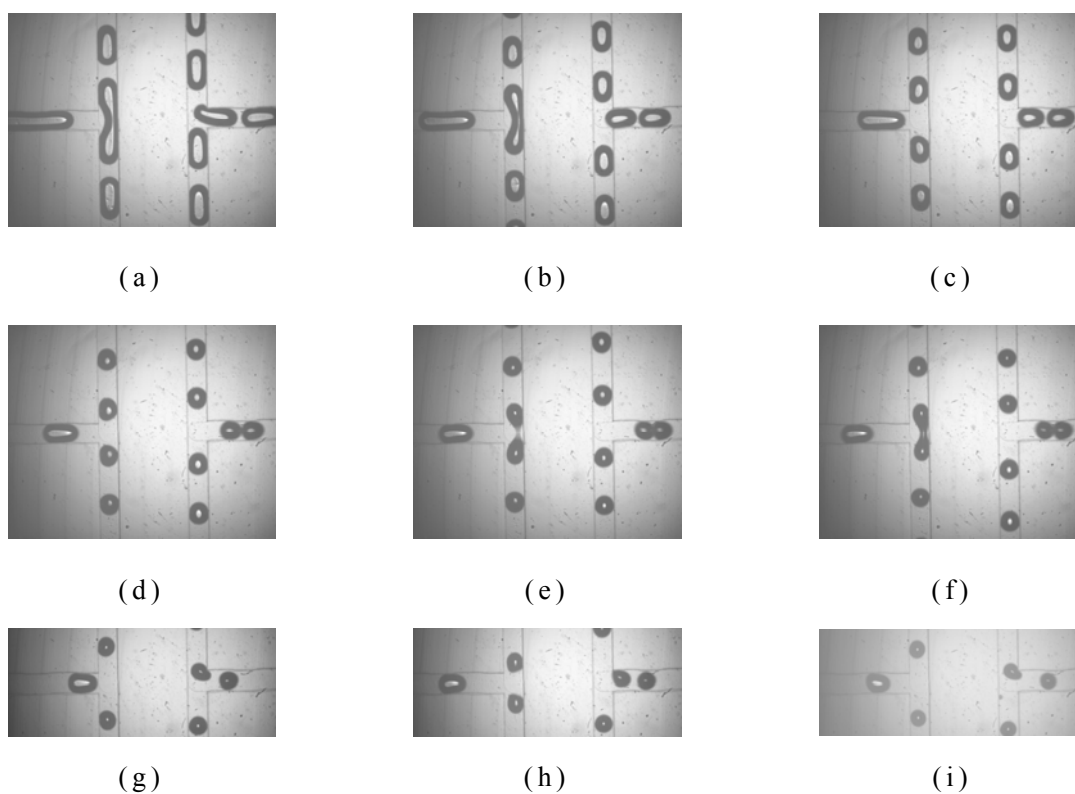


图 4-98 液体流量对生成的成对气泡尺寸的影响

Fig. 4-98 Relationship between the size of the formed pair bubbles and the liquid flow rates. Liquid phase: 0.1 wt% SDS. $Q_g = 2006 \mu\text{L}/\text{min}$. (a) $Q_l = 1000 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) $Q_l = 1500 \mu\text{L}/\text{min}$; (c) $Q_l = 2000 \mu\text{L}/\text{min}$; (d) $Q_l = 3000 \mu\text{L}/\text{min}$; (e) $Q_l = 3500 \mu\text{L}/\text{min}$; (f) $Q_l = 4000 \mu\text{L}/\text{min}$; (g) $Q_l = 4500 \mu\text{L}/\text{min}$; (h) $Q_l = 5000 \mu\text{L}/\text{min}$; (i) $Q_l = 6000 \mu\text{L}/\text{min}$

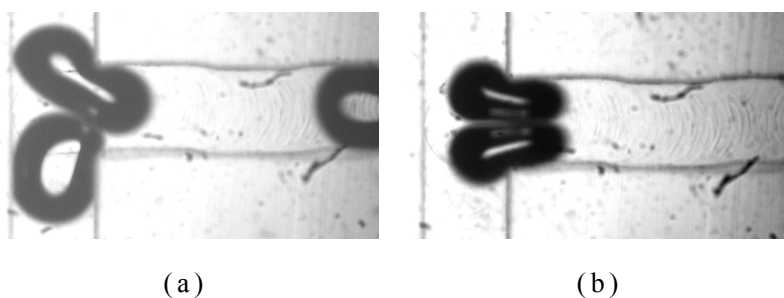


图 4-99 环路出口两气泡碰撞现象

Fig. 4-99 Example for bubble collision at the outlet of the loop. Liquid phase: 0.1 wt% SDS. $Q_g = 2006 \mu\text{L}/\text{min}$. (a) $Q_l = 2000 \mu\text{L}/\text{min}$; (b) $Q_l = 3500 \mu\text{L}/\text{min}$

图 4-100 为生成成对气泡尺寸与气液流量的关系。对不同区域内生成的成对气泡用不同的颜色作了划分。相同的气体流量用相同的图标。生成成对气泡的尺寸随着液体流量的增大而减小，随着气体流量的增大而增大。由非破裂类型生成的成对气泡的尺寸范围为 $1.2 < L/w_c < 2.6$ 。由破裂生成的气泡尺寸范围为 $0.6 < L/w_c < 3.5$ 。

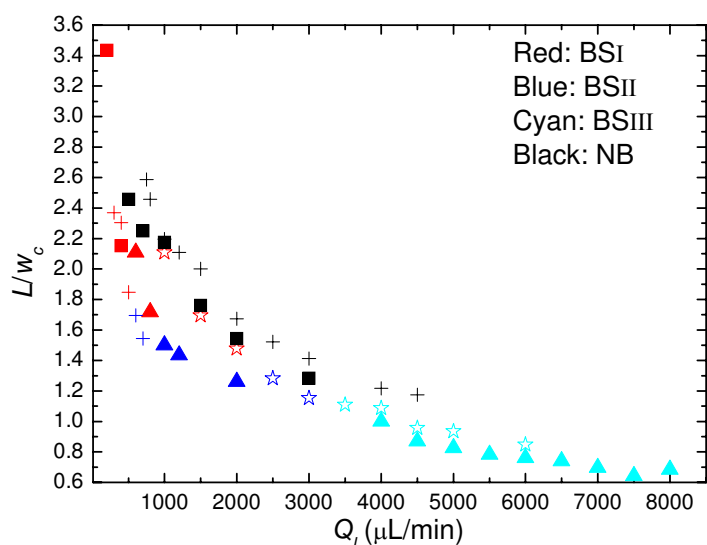


图 4-100 液体流量对生成成对气泡尺寸的影响

Fig. 4-100 Length of formed double bubbles at the outlet of the loop. (square) $Q_g = 154 \mu\text{L}/\text{min}$; (cross) $Q_g = 391 \mu\text{L}/\text{min}$; (triangle) $Q_g = 916 \mu\text{L}/\text{min}$; (star) $Q_g = 2006 \mu\text{L}/\text{min}$. Liquid phase: 0.1 wt% SDS

4.5.8 结论

本节研究了含有环形微通道内气泡的流动规律。主要研究了气泡在 T 型分岔口处的流动行为和 T 型汇集口处的成对行为。

气泡在 T 型分岔口主要呈现六种不同的流动行为：（1）气泡破裂（非对称）类型（BA）；（2）气泡破裂（对称）类型 I (BSI)；（3）气泡破裂（对称）类型 II (BSII)；（4）气泡破裂（对称）类型 III (BSIII)；（5）破裂与非破裂之间的转变区域（TR）；（6）不破裂类型（NB）。

对气泡的三种不同的破裂方式进行了研究，实验发现气泡在不同破裂区域内特征参数的演变规律不同。气泡破裂（对称）类型 I (BSI) 的破裂过程主要由来流控制，由于气泡的阻塞在液体产生

的积压挤压气泡，在气泡颈部的法线方向上使气泡变细，在气泡颈部的切线方向上使之伸展。气泡破裂（对称）类型 II (BS II) 过程中，气泡与管壁出现空隙之前机理同气泡破裂（对称）类型 I，出现空隙后，液相流体流过空隙，流体对气泡的剪切力，流体的惯性力也影响气泡的破裂过程。气泡破裂（对称）类型 III (BS III) 过程中，流体的惯性力控制气泡破裂过程。不破裂类型 (NB) 是由于气泡的伸展度未能满足气泡破裂的条件，故选择分岔口某一侧流出环路。气泡的各种破裂类型及非破裂类型之间的转变可以用毛细管数进行预测。

对气泡在环路出口的汇集成对过程进行了研究。成对气泡的尺寸随着液体流量的增大而减小，随着气体流量的增大而增大。控制气液流量，就可以得到目标尺寸的气泡。

本研究首次发现了在低毛细管数情况下，较长气泡阻塞流体，液体内积压为气泡断裂主要控制力，并研究了这种情况下气泡断裂的动态过程。虽然液滴在含有环形微通道内的破裂过程已有报道 [101, 102, 111]，但是还未见气泡在类似结果微通道内的流动行为研究。

研究了气泡在分岔口出口成对行为。该研究提供了“气泡管理” (bubble management) 的一种新方法。提供了一种特定结构的微通道使气泡破裂后再进行重新组合的方法。

本节研究丰富了微通道的开发领域，弥补了用微通道控制气泡行为的基础实验数据。为进一步的实验和理论研究打下了基础，对今后的应用开发有一定的指导意义。

第五章 结论与展望

5.1 结论

本文对微通道内气液两相流流型特征、气泡生成和流动特性进行了研究，得出如下结论：

1. 用自制的激光影像测量系统研究了深宽为 $40 \times 240 \mu\text{m}$ 和 $40 \times 160 \mu\text{m}$ 的矩形微通道内竖直向上的气液两相流的流型特征。观测到泡状流、弹状流、环状流、环状—分层流以及分层流。分层流出现的原因归因于低深宽比、表面张力以及微通道进口的气液混合效应。流型转变线受流体的性质和管道尺寸的影响。弹状/环状流、环状/环状—分层流、环状—分层流/分层流的流型转变线随着管道尺寸的减小而向左移动，而泡状/弹状流随管道的减小向左下移动。以无量纲数深宽比 h/w_c ，雷诺数 Re ，韦伯数 We 为基础，从数据中归纳出相应的流型转变图。提出的普适性流型图能预测竖直管道内气液两相流中的弹状流和分层流流型。将实验数据与文献中的数据以及大尺寸管道中的流型转变预测线进行了对比，发现报道的数据和传统的流型预测模型并不适用于本实验数据。对于分层流，液膜的厚度随着气体流量的增加、液体流量和管道尺寸的减小而减小；当液体依次用水、乙醇、正丙醇时，液膜逐渐变厚。提出了一个计算液膜厚度的关联式，可以用来计算分层流中液膜的厚度、指导微通道的设计。

2. 研究了气泡在错流接触 T 型微通道内的生成。连续相分别为牛顿流体和非牛顿流体。气泡在牛顿流体中的生成区域可以分为挤压区、过渡区和滴状区。挤压区内气体头夹断过程由积压控制，气泡生成尺寸可以用气液流量比关联；滴状区内气泡生成过程由剪切力和表面张力控制，气泡生成尺寸可以用毛细管数关联；过渡区内气泡生成过程由以上两种机理共同控制，气泡尺寸可以用气液流量比和毛细管数关联。用“两步法”模型分析了气泡生成机理，并考察了操作条件对气泡生成的影响。非牛顿流体 PAAm 溶液的剪切变稀特性对气泡生成过程产生重要影响：使气泡头在切线方向上被拉

伸很远，并使其宽度小于管道宽度。气泡在非牛顿流体中的生成区域可以分为：弹状气泡区、间歇区、分层（喷射）区。刚脱离的气泡尾部要比头部窄，而且气泡宽度比管道窄。气泡在非牛顿流体中的夹断阶段也呈线性发展，由于非牛顿流体的剪切变稀特性，该过程伴随波动。在脱离阶段，气泡头颈部的最小宽度与剩余时间呈指数关系，表明惯性力也影响气泡的生成过程。生成气泡尺寸随着气液流量比的增大而呈非线性增大；随着 PAAm 溶液浓度的增大而减小。

3. 用 micro-PIV 技术测量了 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 和 $400 \times 400 \mu\text{m}$ 微通道内充分发展的牛顿流体以及非牛顿流体的速度场分布。测量结果与理论计算值进行了对比，结果显示百微米级的微通道内速度场的分布可以通过传统理论进行计算。对于非牛顿流体，测量得到的速度场分布提供了一种计算剪切变稀流体的流变指数 n 、剪切速率分布以及粘度分布的方法，为剪切变稀流体的流变性质的测量以及复杂微流体的流动特性提供了一种新的实验方法。

4. 利用高速摄像机和 micro-PIV 研究了尺寸为 $600 \times 600 \mu\text{m}$ 和 $400 \times 400 \mu\text{m}$ 的聚焦流十字型微通道内气泡在各种水溶液内的生成过程，深入研究了弹状气泡的夹断及破裂脱离机理。弹状气泡尺寸随着液体流量和粘度的增大而减小，随着气体流量和管道宽度的增大而增大。在实验基础上，提出了一个基于气液流量比和液体雷诺数的气泡尺寸预测模型。弹状气泡形成过程可以分为：膨胀阶段、夹断阶段和破裂脱离阶段。膨胀之前有一段等待时间。气泡生成过程主要由夹断阶段控制，而夹断速率和夹断时间受气液流量和液体粘度影响。聚焦流十字型微通道内弹状气泡的夹断速度比经典毛细作用夹断原理计算值要小至少一个数量级。液体对气体头的拉伸和剪切作用是其夹断破裂脱离的主要控制力，而不是毛细不稳定作用。提出了基于无量纲数的夹断速度和夹断时间的关联式。弹状气泡生成的破裂脱离阶段，气体头颈部的最小宽度与剩余时间呈系数为 $1/3$ 的指数关系。用 micro-PIV 测量了弹状气泡形成过程中气体头周围流体的速度场分布，提供了流体对气泡生成过程影响的定量实验数据。泡状区内气泡的生成尺寸随连续相流体流量和粘度的增大而减小，随表面张力和气体流量的增大而增大。气泡的生成尺寸可以用修正的局部毛细管数进行关联。

5. 研究了聚焦流十字型微通道内气泡在 PAAm 溶液中的生成，

分析了气泡的生成过程以及生成机理。用高速摄像机实时观察和记录了气泡的动态过程；用 micro-PIV 实时测量了气泡形成过程中周围流场的变化情况。实验发现，气泡脱离宽度在液气流量比高于某一临界值的时候，随其增大而减小，这一临界值随着液体浓度和管道尺寸的变化而变化。生成气泡的尺寸随气液流量、溶液浓度以及管道尺寸的变化而变化，提出了一个基于气液流量比和气液雷诺数比值的气泡生成尺寸预测模型。导弹气泡的生成过程可以分为膨胀、拉伸、夹断和脱离阶段。导弹气泡在 PAAm 溶液中被拉伸得比较长，其气泡的宽度比管道的宽度可以小很多，结果表明溶液的剪切变稀特性对气泡生成过程有重要的影响。通过定量分析发现，气泡生成过程中其截面只占管道截面其中一部分，挤压力对其生成过程不像气泡在牛顿流体中的那样大。通过气泡生成过程周围流场的测量，发现十字型交叉口两侧连续相引入管角落产生漩涡。与大尺寸管道中非牛顿流体中生成的气泡尾部流场不同的是，气泡尾部不存在负尾区。定量研究了下游主通道内气泡的形状与周围流场以及操作条件的关系，通过定性观测气泡形状，可以判断出液体流量的变化趋势以及 PAAm 溶液浓度的变化趋势，为非牛顿流体的流变指数的定性预测提供了一种新的途径和方法。

6. 研究了含突扩结构的微通道内气泡的聚并行为。对于牛顿流体，如果表面张力比较大，气泡在突扩部分很容易聚并；随着表面张力的减小（在连续相流体内加入表面活性剂），聚并概率大大降低，气泡通常聚集在突扩收集部分。对于气泡在非牛顿流体中的行为，本文列举了气泡聚并的几个典型例子。并研究了气泡发生的概率。定量研究发现聚并时间随着聚并位置的增大而增大；聚并时间随着两相连气泡之间的距离的减小而减小。测量了突扩部分气泡周围流场的变化情况，实验发现，流体的流动不是聚并产生的主要因素，而气泡之间形成的液膜“桥”为气泡聚并过程的主要控制因素。实验观测的两种不同的聚并机理随着气液流量的变化而变化。

7. 研究了含有环形微通道内气泡的流动规律：气泡在 T 型分岔口处的流动行为和 T 型汇集口处的成对行为。气泡在 T 型分岔口主要呈现六种不同的流动行为：气泡破裂（非对称）类型(BA)；气泡破裂（对称）类型 I(BSI)；气泡破裂（对称）类型 II (BSII)；气泡破裂（对称）类型 III (BSIII)；破裂与非破裂之间的转变区域(TR)；不破裂类型(NB)。气泡破裂（对称）类型 I (BSI)的破裂过程主要

由来流控制，由于气泡阻塞而在液体内产生的积压挤压气泡，在气泡颈部的法线方向上使气泡变细，在气泡颈部的切线方向上使之伸展。气泡破裂（对称）类型 II (BS II)的气泡破裂过程中，气泡与管壁出现空隙之前机理同气泡破裂（对称）类型 I，出现空隙后，液相流体流过空隙，流体对气泡的剪切力、流体的惯性力也影响气泡的破裂过程。气泡破裂（对称）类型 III (BS III)的气泡破裂过程中，流体的惯性力控制气泡破裂过程。不破裂类型(NB)是由于气泡的伸展度未能满足气泡破裂的条件，故选择分岔口某一侧流出环路。各类型之间的转变条件可以用气泡的无量纲长度和毛细管数进行预测。研究了气泡在环路出口汇集的成对行为。成对气泡的尺寸随着液体流量的增大而减小，随着气体流量的增大而增大。通过控制气液流量，可以得到目标尺寸的气泡。

5.2 展望

本文采用实验方法，对微通道内气液两相流流动行为、气泡生成及流动特性进行了研究，对于微通道内气液两相流的研究及应用具有一定的指导意义。但是鉴于微流体的复杂性和特殊性，目前的研究主要集中在实验阶段，对理论机理的研究还有待进一步的加强。

对于微通道内的气液两相流，还未见普适性的流型预测转换线，通常需要对特定微通道内特定流体进行流型的研究，然后在合适的范围内控制流体。还需要补充微通道内气液两相流的流型数据。在理论方面，需要推演出流型转变条件。

不同微通道内气泡的生成机理不同。文献中气泡在不同结构微通道内的生成数据较多，目前需要对各种结构和尺寸的微通道内气泡生成的数据进行整理归类，并从理论方面建立物理模型，预测气泡生成尺寸。

流体的性质对气泡生成过程影响很大。目前研究的连续相流体通常是牛顿流体，而在实际应用中，非牛顿流体很常见。微通道内气泡在非牛顿流体中生成、发展和聚并规律的研究有利于拓展微流体的应用领域。需要对不同结构的微通道内气泡在非牛顿流体中的生成、发展和聚并进行系统的实验、数值模拟和理论研究。

“气泡管理”（bubble management）是对生成的气泡进行再次

控制，以便达到预期的应用目标。气泡的分裂就是其中之一。见报道的该类型的基础研究比较少。实验方面，需要补充流体物性、微通道结构和尺寸等对气泡分裂过程的影响。需要补充气泡破裂过程的物理研究。

现阶段，微粒子成像测速仪（**micro-PIV**）用于微流体的速度场测量的数据很有限。需要补充不同应用背景的微流体的实时分布速度场。

符号说明

A	管道的截面积；气泡头部的二维平面面积， m^2
b	气泡（液滴）生成过程头部顶端在第一阶段的终长度， μm
C_D	曳力系数
d	气泡与管壁之间空隙的最小距离；液滴或气泡的生成直径；分散相颈部的宽度， μm
\bar{d}	气泡（液滴）的无量纲直径
D_o	聚并时刻之前两气泡中心位置， μm
D_H	微通道截面的当量直径， μm
F_p	积压力，N
F_r	黏性力，N
F_σ	界面张力，N
g	重力加速度， $\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$
Q	流体体积流量， $\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$
Q_g	气体体积流量， $\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$
Q_l	液体体积流量， $\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$
Q_c	连续相的体积流量， $\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$
Q_d	分散相的体积流量， $\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$
h	管道的深度，m
j_G	气体表观速率， $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
j_L	液体表观速率， $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
k	常数
L_E	发展段长度，m
L_l	D1类型微装置内气泡破裂过程中两端距离；气泡头顶端离两相接触口的距离， μm
l	微通道长度；径向特征长度， μm
L	气泡长度， μm
\bar{L}	无量纲长度
l_o	小孔的长度， μm
m	常数

n	常数
P	压力, Pa
P_c	流体经过管道产生的压力差, Pa
ΔP	压差, Pa
$(\Delta P)_t$	气泡头顶端界面两侧的压力差, Pa
$(\Delta P)_n$	气泡头颈部界面两侧的压力差, Pa
r	与管道中间层的径向距离, m
R	管道深度的一半, μm
r_{3D}	气泡(液滴)的当量半径, μm
r_g	气泡(液滴)头膨胀阶段的最终半径, μm
r_n	气泡头颈部的曲率半径, μm
r_{jet}	气泡(液滴)喷射流区内其头部半径, μm
$\langle s^2 \rangle$	为粒子扩散的均方距离
T	气泡生成周期; 聚并周期, ms
t	时间, ms
t_b	特征破裂时间, ms
t_c	夹断时间, ms
t_e	膨胀时间, ms
t_l	液体流过气液接触口的特征时间, ms
t_p	脱离时间, ms
$t_{squeeze}$	气泡头经历的挤压时间, ms
U, u	速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
\bar{u}	平均速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
\bar{u}_d	分散相头的局部平均速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
\bar{u}_c	连续相在分散相头周围的局部平均速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
u_c	细线的夹断速度; 连续相的表观速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
u_m	两相流的特征速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
u_{max}	局部最大速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
u_l	液相表观速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
u_d	分散相的表观速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
u_g	气相表观速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
u_{growth}	气泡头的生长速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
$u_{squeeze}$	气泡头的挤压速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$
u_{gap}	气泡头与管壁之间空隙的表观速度, $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$

V	气泡（液滴）的体积， m^3
\bar{V}	无量纲体积
V_g	气泡头膨胀阶段的最终体积， m^3
W	气泡头细线的宽度， μm
W_c	管道宽度， μm
w_c	连续相引入管及主通道的宽度， μm
w_d	分散相引入管的宽度， μm
W_g	气体引入管的宽度， μm
W_l	液体引入管的宽度， μm
W_o	小孔的宽度， μm
W_{out}	出口腔的宽度， μm
W_b	气泡宽度， μm
W_n	气泡头颈部的宽度， μm
W_m	气泡头颈部的最大或者最小宽度， μm
x_c	发生聚并位置， m
y	距离管道中心线的距离， μm
Λ	引入分散相与连续相管道的宽度比

希腊字母

μ	粘度， $\text{mPa}\cdot\text{s}$
μ_c	连续相流体的粘度， $\text{mPa}\cdot\text{s}$
μ_d	分散相流体的粘度， $\text{mPa}\cdot\text{s}$
ρ	密度， $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$
σ	表面张力， $\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$
τ	剪切力， Pa
$\dot{\gamma}$	剪切速率， s^{-1}
$\dot{\gamma}_d$	气泡与管道壁面之间空隙的剪切速率与整个管道内的剪切速率的比值
η	粘度， $\text{mPa}\cdot\text{s}$
φ	分散相流体与连续相流体的流量比
δ	D1 类型微装置内气泡破裂过程中颈部最小宽度， μm
λ	分散流与连续相流体的粘度比
\emptyset	微过滤膜的孔径， μm
α	空含率；特征常数

α_m	转变过程中弹状—泡状段的平均气含率
θ	液膜厚度, μm ; 角度, $^\circ$
ε	气泡与关闭之间的薄膜厚度, μm
ε_e	液滴的延展度

准数

Ca	Capillary 准数, $=\mu u/\sigma$
Oh	Ohnesorge 准数, $=\mu/\rho\sigma l$
Re	Reynolds 准数, $=\rho u l/\mu$
We	Weber 准数, $=\rho u^2 l/\sigma$
Bo	Bond 准数, $=(\rho_c - \rho_d) g w^2/\sigma$

下角标

l	液相
L	液相
g	气相
G	气相
i	考察的相, 即连续相或分散相
c	连续相
d	分散相

参考文献

- [1] Dittrich P S, Tachikawa K, Manz A, Micro total analysis systems. Latest advancements and trends, *Analytical Chemistry*, 2006, 78: 3887-3907
- [2] Perkel J M, Microfluidics-bringing new things to life science, *Science*, 2007, 322: 975-977
- [3] Squires T M, Quake S R, Microfluidics: Fluid physics at the nanoliter scale, *Reviews of Modern Physics*, 2005, 77: 977-1026
- [4] Stone H A, Kim S, Microfluidics: basic issues, applications, and challenges, *AIChEJ*, 2001, 47: 1250-1254
- [5] Whitesides G M, The origins and the future of microfluidics, *Nature*, 2006, 442: 368-373
- [6] Stone H A, Stroock A D, Ajdari A, Engineering flows in small devices: Microfluidics toward a lab-on-a-chip, *Annual Review of Fluid Mechanics*, 2004, 36: 381-411
- [7] Tabeling T, A brief introduction to slippage, droplets and mixing in microfluidic systems, *Lab on a Chip*, 2009, 9: 2428-2436
- [8] 陈光文, 袁权, 微化工技术, *化工学报*, 2003, 54: 427-439
- [9] Hessel V, Lowe H, Schonfeld F, Micromixers - a review on passive and active mixing principles, *Chemical Engineering Science*, 2005, 60: 2479-2501
- [10] Charpentier J C, Process intensification by miniaturization, *Chemical Engineering & Technology*, 2005, 28: 255-258
- [11] Utada A S, Lorenceau E, Link D R, et al., Monodisperse double emulsions generated from a microcapillary device, *Science*, 2005, 308: 537-541
- [12] Cristin V, Tan Y-C, Theory and numerical simulation of droplet dynamics in complex flows-a review, *Lab on a Chip*, 2004, 4: 257-264
- [13] Tonkovich A Y, Perry S, Wang Y, et al., Microchannel process technology for compact methane steam reforming, *Chemical Engineering Science*, 2004, 59: 4819-4824
- [14] Song H, Chen D L, Ismagilov R F, Reactions in droplets in microfluidic channels, *Angewandte Chemie-International Edition*, 2006, 45: 7336-7356
- [15] Tonkovich A, Kuhlmann D, Rogers A, et al., Microchannel technology scale-up to commercial capacity, *Chemical Engineering Research & Design*, 2005, 83: 634-639

- [16] Hessel V, Stange T, Micro chemical processing at IMM from pioneering work to customer specific services, *Lab on a Chip*, 2002, 2002: 14-21
- [17] Zhang H, Chen G, Yue J, et al., Hydrodynamics and mass transfer of gas-liquid flow in a falling film microreactor, *AIChE J*, 2009, 55: 1110-1120
- [18] Yue J, Chen G, Yuan Q, et al., Hydrodynamics and mass transfer characteristics in gas-liquid flow through a rectangular microchannel, *Chemical Engineering Science*, 2007, 62: 2096-2108
- [19] Xu J H, Li S W, Chen G G, et al., Formation of monodisperse microbubbles in a microfluidic device, *AIChE Journal*, 2006, 52: 2254-2259
- [20] Xu J H, Luo G S, Li S W, et al., Shear force induced monodisperse droplet formation in a microfluidic device by controlling wetting properties, *Lab on a Chip*, 2006, 6: 131-136
- [21] Xu J H, Li S W, Wang Y J, et al., Controllable gas-liquid phase flow patterns and monodisperse microbubbles in a microfluidic T-junction device, *Applied Physics Letters*, 2006, 88: 133506
- [22] Ehrfeld W, Hessel V, Lowe H. *Microreactors-New technology for modern chemistry*. Weinheim: WILEY-VCH 2000
- [23] Benson R S, Ponton J W, Process miniaturization-a route to total environmental acceptability?, *Trans. Ind. Chem. Eng.*, 1993, 71: 160-168
- [24] Tabeling T. *Introduction a la microfluidique*. Berlin 2003
- [25] Xu J H, Li S W, Tan J, et al., Controllable preparation of monodisperse O/W and W/O emulsions in the same microfluidic device, *Langmuir*, 2006, 22: 7943-7946
- [26] Kim H, Luo D, Link D, et al., Controlled production of emulsion drops using an electric field in a flow-focusing microfluidic device, *Applied Physics Letters*, 2007, 91: 133106
- [27] Chen C-H, Shah R K, Abate A R, et al., Janus particles templated from double emulsion droplets generated using microfluidics, *Langmuir*, 2009, 25: 4320-4323
- [28] Frenz L, Blouwolf J, Griffiths A D, et al., Microfluidic production of droplet pairs, *Langmuir*, 2008, 24: 12073-12076
- [29] Utada A S, Lorenceau E, Link D R, et al., Monodisperse double emulsions generated from a microcapillary device, *Science*, 2005, 308: 537-541
- [30] Günther A, Jensen K F, Multiphase microfluidics: from flow characteristics to chemical and materials synthesis, *Lab on a Chip*, 2007, 7: 935-935
- [31] Hu G Q, Li D Q, Multiscale phenomena in microfluidics and nanofluidics, *Chemical Engineering Science*, 2007, 62: 3443-3454

-
- [32] Kreutzer M T, Kapteijn F, Moulijn J A, et al., Multiphase monolith reactors: Chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels, *Chemical Engineering Science*, 2005, 60: 5895-5916
- [33] Coleman J W, Garimella S, Characterization of two-phase flow patterns in small diameter round and rectangular tubes, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 1999, 42: 2869-2881
- [34] Akbar M K, Plummer D A, Ghiaasiaan S M, On gas-liquid two-phase flow regimes in microchannels, *International Journal of Multiphase Flow*, 2003, 29: 855-865
- [35] Serizawa A, Feng Z, Kawara Z, Two-phase flow in microchannels, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 2002, 26: 703-714
- [36] Chen W L, Twu M C, Pan C, Gas-liquid two-phase flow in micro-channels, *International Journal of Multiphase Flow*, 2002, 28: 1235-1247
- [37] Kawahara A, Chung P M Y, Kawaji M, Investigation of two-phase flow pattern, void fraction and pressure drop in a microchannel, *International Journal of Multiphase Flow*, 2002, 28: 1411-1435
- [38] Zhao T S, Bi Q C, Co-current air-water two-phase flow patterns in vertical triangular microchannels, *International Journal of Multiphase Flow*, 2001, 27: 765-782
- [39] Liu H, Vandu C O, Krihna R, Hydrodynamics of Taylor flow in vertical capillaries: flow regimes, bubble rise velocity, liquid slug length, and pressure drop, *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 2005, 44: 4884-4897
- [40] Waelchli S, Rudolf von Rohr P, Two-phase flow characteristics in gas-liquid microreactors, *International Journal of Multiphase Flow*, 2006, 32: 791-806
- [41] Steinbrenner J E, Hidrovo C H, Wang F-M, et al., Measurement and modeling of liquid film thickness evolution in stratified two-phase microchannel flows, *Applied Thermal Engineering*, 2007, 27: 1722-1727
- [42] Liu D, Wand S, Flow pattern and pressure drop of upward two-phase flow in vertical capillaries, *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 2008, 47: 243-255
- [43] Lee C Y, Lee S Y, Influence of surface wettability on transition of two-phase flow pattern in round mini-channels, *International Journal of Multiphase Flow*, 2008, 34: 706-711
- [44] Weinmueller C, Hotz N, Mueller A, et al., On two-phase flow patterns and transition criteria in aqueous methanol and CO₂ mixtures in adiabatic, rectangular microchannels, *International Journal of Multiphase Flow*, 2009, 35: 760-772

-
- [45] Shao N, Gavriilidis A, Angeli P, Flow regimes for adiabatic gas-liquid flow in microchannels, *Chemical Engineering Science*, 2009, 64: 2749-2761
- [46] Triplett K A, Ghiaasiaan S M, Abdel-Khalik S I, et al., Gas-liquid two-phase flow in microchannels: Part II: void fraction and pressure drop, *International Journal of Multiphase Flow*, 1999, 25: 395-410
- [47] Cubaud T, Ho C M, Transport of bubbles in square microchannels, *Physics of Fluids*, 2004, 16: 4575-4585
- [48] Ide H, Kariyasaki A, Fukano T, Fundamental data on the gas-liquid two-phase flow in minichannels, *International Journal of Thermal Sciences*, 2007, 46: 519-530
- [49] Biswas J, Greenfield P F, Two phase flow through vertical capillaries-existence of a stratified flow pattern, *International Journal of Multiphase Flow*, 1985, 11: 553-563
- [50] Galbiati L, Andreini P, Flow pattern transition for vertical downward two-phase flow in capillary tubes. Inlet mixing effects, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 1992, 19: 791-799
- [51] Sobierska E, Kulenovic R, Mertz R, et al., Experimental results of flow boiling of water in a vertical microchannel, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 2006, 31: 111-119
- [52] Fu X, Qi S L, Zhang P, et al., Visualization of flow boiling of liquid nitrogen in a vertical mini-tube, *International Journal of Multiphase Flow*, 2008, 34: 333-351
- [53] Li J, Peterson G P, Boiling nucleation and two-phase flow patterns on forced liquid flow in microchannels, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2005, 48: 4797-4810
- [54] Yen T-H, Shoji M, Takemura F, et al., Visualization of convective boiling heat transfer in single microchannels with different shaped cross-sections, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2006, 49: 3884-3894
- [55] Fu B R, Pan C, Flow pattern transition instability in a microchannel with CO₂ bubbles produced by chemical reactions, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2005, 48: 4397-4409
- [56] Dollet B, van Hoeve W, Raven J-p, et al., Role of the channel geometry on the bubble pinch off in flow focusing devices, *Physical Review Letters*, 2008, 100: 034504
- [57] Garstecki P, Stone H A, Whitesides G M, Mechanism for flow-rate controlled breakup in confined geometries: A route to monodisperse emulsions, *Physical Review Letters*, 2005, 94: 164501

- [58] Garstecki P, Gitlin I, DiLuzio W, et al., Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic flow-focusing device, *Applied Physics Letters*, 2004, 85: 2649-2651
- [59] Thorsen T, Roberts R W, Arnold F H, et al., Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device, *Physical Review Letters*, 2001, 86: 4163-4166
- [60] Steegmans M L J, Schroën C G P H, Boom R M, Generalised insights in droplet formation at T-junctions through statistical analysis, *Chemical Engineering Science*, 2009, 64: 3042-3050
- [61] Christopher G F, Anna S L, Microfluidic methods for generating continuous droplet streams, *Journal of Physics D:Applied Physics*, 2007, 40: R319-R336
- [62] Christopher G F, Noharuddin N N, Taylor J A, et al., Experimental observations of the squeezing-to-dripping transition in T-shaped microfluidic junctions, *Physical Review E*, 2008, 78: 036317
- [63] Nisisako T, Torii T, Higuchi T, Droplet formation in a microchannel network, *Lab on a Chip*, 2002, 2: 24-26
- [64] van der Graaf S, Nisisako T, Schroën C G P H, et al., Lattice Boltzmann simulations of droplet formation in a T-shaped microchannel, *Langmuir*, 2006, 22: 4144-4152
- [65] Garstecki P, Fuerstman M J, Stone H A, et al., Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction - Scaling and mechanism of break-up, *Lab on a Chip*, 2006, 6: 437-446
- [66] Husny J, Cooper-White J J, The effect of elasticity on drop creation in T-shaped microchannels, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 2006, 137: 121-136
- [67] Xu J H, Luo G S, Chen G G, et al., Experimental and theoretical approaches on droplet formation from a micrometer screen hole, *Journal of Membrane Science*, 2005, 266: 121-131
- [68] Xu J H, Li S W, Tan J, et al., Correlation of droplet formation in T-junction microfluidic devices:from squeezing to dripping, *Microfluidics and Nanofluidics*, 2008, 5: 711-717
- [69] de Menech M, Garstecki P, Jousse F, et al., Transition from squeezing to dripping in a microfluidic T-shaped junction, *Journal of Fluid Mechanics*, 2008, 595: 141-161
- [70] van Steijn V, Kreutzer M T, Kleijn C R, μ -PIV study of the formation of segmented flow in microfluidic T-junctions, *Chemical Engineering Science*, 2007, 62: 7505-7514

- [71] Tice J D, Lyon A D, Ismagilov R F, Effects of viscosity on droplet formation and mixing in microfluidic channels, *Analytica Chimica Acta*, 2004, 507: 73-77
- [72] Guillot P, Colin A, Stability of parallel flows in a microchannel after a T junction, *Physical Review E.*, 2005, 72: 066301
- [73] Steegmans M L J, Schroën K G P H, Boom R M, Characterization of Emulsification at Flat Microchannel Y Junctions, *Langmuir*, 2009, 25: 3396-3401
- [74] Zhao Y, Chen G, Yuan Q, Liquid-liquid two-phase flow patterns in a rectangular microchannel, *AIChE Journal*, 2006, 52: 4052-4060
- [75] Qian D, Lawal A, Numerical study on gas and liquid slugs for Taylor flow in a T-junction microchannel, *Chemical Engineering Science*, 2006, 61: 7609-7625
- [76] Gañán-Calvo A M, Gordillo J M, Perfectly monodisperse microbubbling by capillary flow focusing, *Physical Review Letters*, 2001, 87: 274501
- [77] Gordillo J M, Cheng Z, Gañán-Calvo A M, et al., A new device for the generation of microbubbles, *Physics of Fluids*, 2004, 16: 2828-2834
- [78] Skurtys O, Bouchon P, Aguilera J M, Formation of bubbles and foams in gelatine solutions within a vertical glass tube, *Food hydrocolloids*, 2008, 22: 706-714
- [79] Weber M W, Shandas R, Computational fluid dynamics analysis of microbubble formation in microfluidic flow-focusing devices, *Microfluidics and Nanofluidics*, 2007, 3: 195-206
- [80] Cubaud T, Tatineni M, Zhong X, et al., Bubble dispenser in microfluidic devices, *Physical Review E.*, 2005, 72: 037302
- [81] Dietrich N, Poncin S, Midoux N, et al., Bubble formation dynamics in various flow-focusing microdevices, *Langmuir*, 2008, 24: 13904-13911
- [82] Fu T, Ma Y, Funfschilling D, et al., Bubble formation and breakup mechanism in a microfluidic flow-focusing device, *Chemical Engineering Science*, 2009, 64: 2392-2400
- [83] Yu Z, Hemminger O, Fan L-S, Experiment and lattice Boltzmann simulation of two-phase gas-liquid flows in microchannels, *Chemical Engineering Science*, 2007, 62: 7172-7183
- [84] Jensen M J, Stone H A, Bruus H, A numerical study of two-phase Stokes flow in an axisymmetric flow-focusing device, *Physics of Fluids*, 2006, 18: 077103
- [85] Sullivan M T, Stone H A, The role of feedback in microfluidic flow-focusing devices, *Philosophical Transactions of The Royal Society A*, 2008, 366: 2131-2143

-
- [86] Umbanhowar P B, Prasad V, Weitz D A, Monodisperse Emulsion Generation via Drop Break Off in a Coflowing Stream, *Langmuir*, 2000, 16: 347-351
- [87] Basaran O A, Suryo R, The invisible jet, *Nature Physics*, 2007, 3: 679-680
- [88] Cramer C, Fischer P, Windhab E J, Drop formation in a co-flowing ambient fluid, *Chemical Engineering Science*, 2004, 59: 3045-3058
- [89] Guillot P, Colin A, Utada A S, et al., Stability of a Jet in Confined Pressure-Driven Biphasic Flows at Low Reynolds Numbers, *Physical Review Letters*, 2007, 99: 104502
- [90] Utada A S, Fernandez-Nieves A, Stone H A, et al., Dripping to Jetting Transitions in Coflowing Liquid Streams, *Physical Review Letters*, 2007, 99: 094502
- [91] Hong Y, Wang F, Flow rate effect on droplet control in a co-flowing microfluidic device, *Microfluidics and Nanofluidics*, 2007, 3: 341-346
- [92] Hua J, Zhang B, Lou J, Numerical simulation of microdroplet formation in coflowing immiscible liquids, *AIChE Journal*, 2007, 53: 2534-2548
- [93] Xu J H, Li S W, Lan W J, et al., Microfluidic approach for rapid interfacial tension measurement, *Langmuir*, 2008, 24: 11287-11292
- [94] Anna S L, Bontoux N, Stone H A, Formation of dispersions using "flow focusing" in microchannels, *Applied Physics Letters*, 2003, 82: 364-366
- [95] Anna S L, Mayer H C, Microscale tipstreaming in a microfluidic flow focusing device, *Physics of Fluids*, 2006, 18: 121512
- [96] Zhou C F, Yue P T, Feng J J, Formation of simple and compound drops in microfluidic devices, *Physics of Fluids*, 2006, 18: 092105
- [97] Yobas L, Martens S, Ong W L, et al., High-performance flow-focusing geometry for spontaneous generation of monodispersed droplets, *Lab on a Chip*, 2006, 6: 1073-1079
- [98] Nie Z H, Seo M S, Xu S Q, et al., Emulsification in a microfluidic flow-focusing device: effect of the viscosities of the liquids, *Microfluidics and Nanofluidics*, 2008, 5: 585-594
- [99] Funfschilling D, Debas H, Li H Z, et al., Flow-field dynamics during droplet formation by dripping in hydrodynamic-focusing microfluidics, *Physical Review E.*, 2009, 80: 015301
- [100] Cubaud T, Mason T,G., Capillary thread and viscous droplets in square microchannels, *Physics of Fluids*, 2008, 20: 053302
- [101] Jullien M C, Ching M J T M, Cohen C, et al., Droplet breakup in microfluidic T-junctions at small capillary numbers, *Physics of Fluids*, 2009, 21: 072001

-
- [102] Link D R, Anna S L, Weitz D A, et al., Geometrically mediated breakup of drops in microfluidic devices, *Physical Review Letters*, 2004, 92: 054503
- [103] Engl W, Roche M, Colin A, et al., Droplet traffic at a simple junction at low capillary numbers, *Physical Review Letters*, 2005, 95: 208304
- [104] Engl W, Ohata K, Guillot P, et al., Selection of two-phase flow patterns at a simple junction in microfluidic devices, *Physical Review Letters*, 2006, 96: 134505
- [105] Cristobal G, Benoit J P, Joanicot M, et al., Microfluidic bypass for efficient passive regulation of droplet traffic at a junction, *Applied Physics Letters*, 2006, 89: 034104
- [106] Fuerstman M J, Garstecki P, Whitesides G M, Coding/decoding and reversibility of droplet trains in microfluidic networks, *Science*, 2007, 315: 828-832
- [107] Prakash M, Gershenfeld N, Microfluidic bubble logic, *Science*, 2007, 315: 832-835
- [108] Baroud C N, Tsikata S, Heil M, The propagation of low-viscosity fingers into fluid-filled branching networks, *Journal of Fluid Mechanics*, 2006, 546: 285-294
- [109] Ody C P, Baroud C N, de Langre E, Transport of wetting liquid plugs in bifurcating microfluidic channels, *Journal of Colloid and Interface Science*, 2007, 308: 231-238
- [110] Lao K-L, Wang J-H, Lee G-B, A microfluidic platform for formation of double-emulsion droplets, *Microfluidics and Nanofluidics*, 2009, Doi:10.1007/s10404-009-0430-9
- [111] Leshansky A M, Pismen L M, Breakup of drops in a microfluidic T junction, *Physics of Fluids*, 2009, 21: 023303
- [112] Menetrier-Deremble L, Tabeling P, Droplet breakup in microfluidic junctions of arbitrary angles, *Physical Review E*, 2006, 74: 035303
- [113] Santiago J G, Wereley S T, Meinhart C D, et al., A particle image velocimetry system for microfluidics, *Experiments in Fluids*, 1998, 25: 316-319
- [114] Lindken R, Westerweel J, Wieneke B, Stereoscopic micro particle image velocimetry, *Experiments in Fluids*, 2006, 41: 161-171
- [115] Günther A, Khan S A, Thalmann M, et al., Transport and reaction in microscale segmented gas-liquid flow, *Lab on a Chip*, 2004, 4: 278-286
- [116] Bown M R, MacInnes J M, Allen R W K, Three-component micro-PIV using the continuity equation and a comparison of the performance with that of stereoscopic measurements, *Experiments in Fluids*, 2007, 42: 197-205

- [117] Sarrazin F, Loubière K, Prat L, et al., Experimental and numerical study of droplets hydrodynamics in microchannel, *AICHE Journal*, 2006, 52: 4061-4070
- [118] Go J S, Shoji S, Digital sorting of flow-through droplet phase microfluid, *Japanese Journal of Applied Physics*, 2003, 42: 448-450
- [119] Xiong R, Bai M, Chung J N, Formation of bubbles in a simple co-flowing micro-channel, *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 2007, 17: 1002-1011
- [120] Fu T, Funfschilling D, Ma Y, et al., Scaling the formation of slug bubbles in microfluidic flow-focusing devices, *Microfluidics and Nanofluidics*, 2009, Doi 10.1007/s10404-009-0471-0
- [121] 方肇伦, 微流控分析芯片的制作及应用, 北京: 化学工业出版社, 2005: 9-61
- [122] 林炳承, 秦建华, 微流控芯片实验室, 北京: 科学出版社, 2006: 16-46
- [123] 王昊利, 王元, Micro-PIV 技术——粒子图像测速技术的新进展, *力学进展*, 2005, 35: 77-99
- [124] Meinhart C, Wereley S T, Santiago JG, PIV measurements of a microchannel flow, *Experiments in Fluids*, 1999, 27: 414-419
- [125] Einstein A, On the movement of small particles suspended in a stationary liquid demanded by the Molecular-Kinetic theory of heat, *Ann Phys*, 1905, 17: 549-560
- [126] Meinhart C D, Wereley S T, Gray M H B, Volume illumination for two-dimensional particle image velocimetry, *Measurement Science and Technology*, 2000, 11: 809-814
- [127] Taitel Y, Barnea D, Dukler A E, Modeling flow pattern transition for steady upward gas-liquid flow in vertical tubes, *AICHE J*, 1980, 26: 345-354
- [128] Mishima K, Ishii M, Flow regime transition criteria for upward two-phase flow in vertical tubes, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 1984, 27: 723-737
- [129] Hibiki T, Mishima K, Flow regime transition criteria for upward two-phase flow in vertical narrow rectangular channels, *Nuclear Engineering and Design*, 2001, 203: 117-131
- [130] van Steijn V, Kreutzer M T, Kleijn C R, Velocity fluctuations of segmented flow in microchannels, *Chemical Engineering Journal*, 2008, 135: S159-S165
- [131] Patzek T W, Silin D B, Shape factor and hydraulic conductance in noncircular capillaries I. One-phase creeping flow., *Journal of colloid and interface science*, 2001, 71: 295-304

-
- [132] Koh Y H, Ong N S, Chen X Y, et al., Effect of temperature and inlet velocity on the flow of a nonnewtonian fluid, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 2004, 31: 1005-1013
- [133] Tjahjadi M S H A, Ottino J M, Satellite and subsatellite formation in capillary breakup, *J. Fluid Mech.*, 1992, 243: 297-317
- [134] Papageorgiou D T, On the breakup of viscous liquid threads, *Physics of Fluids*, 1995, 7: 1529-1544
- [135] Burton J C, Waldrep R, Taborek P, Scaling and instability in bubble pinch-off, *Physical Review Letters*, 2005, 94: 184502
- [136] Li H Z, Mouline Y, Midoux N, Modelling the bubble formation dynamics in non-Newtonian fluids, *Chemical Engineering Science*, 2002, 57: 339-346
- [137] Frank X, Funfschilling D, Midoux N, et al., Bubbles in a viscous liquid: Lattice Boltzmann simulation and experimental validation, *Journal of Fluid Mechanics*, 2006, 546: 113-122
- [138] Funfschilling D, Li H Z, Flow of non-Newtonian fluids around bubbles: PIV measurements and birefringence visualisation, *Chemical Engineering Science*, 2001, 56: 1137-1141
- [139] Stone H A, Dynamics of drop deformation and breakup in viscous fluids, *Annual review of fluid mechnics*, 1994, 26: 65-102
- [140] Arratia P E, Gollub J P, Durian D J, Polymeric filament thinning and breakup in microchnnels, *Physical Review E.*, 2008, 77: 036309
- [141] Edmond K V, Schofield A B, Marquez M, et al., Stable jets of viscoelastic fluids and self-assembled cylindrical capsules by hydrodynamic focusing, *Langmuir*, 2006, 22: 9052-9056
- [142] Bremond N, Thiam A R, Bibette J, Decompressing Emulsion Droplet Favors Coalescence, *Physical Review Letters*, 2008, 100: 024501
- [143] Christopher G F, Bergstein J, End N B, et al., Coalescence and splitting of confined droplets at microfluidic junctions, *Lab on A Chip*, 2009, 9: 1102-1109

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur Chunli LI, Professeur, Hebei University of Technology, China

Monsieur Zeting ZHANG, Professeur, Beijing University of Chemical Technology, China

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur FU Taotao

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

"Ecoulements gaz-liquide et comportement des bulles en microcanaux"

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « **Génie des Procédés et des Produits** »

Fait à Vandoeuvre, le 09 juin 2010

Le Président de l'I.N.P.L.

F. LAURENT



NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 5 4 5 0 1
VANDŒUVRE CEDEX

ABSTRACT

Gas-liquid two-phase flow is an important research project in microfluidics. The gas-liquid two-phase flow, the bubble formation and moving behaviors in microchannels were investigated, by using a high speed digital camera and a micro Particle Image Velocimetry (micro-PIV). The gas-liquid two-phase flow in vertical rectangular microchannels was investigated and a flow pattern map was constructed; the bubble formation in both Newtonian and non-Newtonian fluids in cross-flowing microfluidic T-junctions and flow-focusing devices was investigated; the bubble formation process could be divided into expansion, collapse and pinch-off stages; the collapse speed of the gaseous thread in the second stage is controlled by the squeezing pressure, and is proportional to the liquid flow rates; while the minimum width of the neck of the gaseous thread in the third stage for bubble formation in flow-focusing devices could be scaled with the remaining time to the ultimate pinch-off as a power law relationship with an exponent of $1/3$; the PAAm solutions prolong the gaseous thread in the tangential direction of the neck; bubble coalescence in a microchannel with an expansion section was studied; the bubble behavior in a microchannel with a loop was also investigated.

摘要

气液两相流是微流体技术的重要研究内容。本文用高速摄像机研究了微通道内气液两相流、气泡的生成及流动特性；用微粒子成像测速仪研究了微流体内的速度场分布。观测了竖直矩形微通道内气液两相流流型，建立了相应的流型转变图；研究了错流 T 型、聚焦流十字型微通道内气泡在牛顿流体及非牛顿流体内的生成；考察了操作条件对弹状气泡生成过程及尺寸的影响；研究表明弹状气泡的生成过程分为膨胀、夹断和脱离三个阶段，气泡头颈部在夹断阶段的速度由流体内产生的积压控制；聚焦十字型微通道内弹状气泡生成的脱离阶段中气泡头颈部最小宽度与剩余时间呈指数为 $1/3$ 的指数关系；实验发现非牛顿流体 PAAm 溶液对气泡头产生拉伸作用，提出了基于气液流量比和雷诺数比的气泡尺寸预测模型；研究了气泡在含有突扩结构的微通道内的聚并现象；研究了气泡在含有环形结构的微通道内的流动行为。

Résumé

Les écoulements gaz-liquide constituent un axe de recherche très actif en microfluidique. Le rapport des débits entre les deux phases, la formation de bulles et les champs de vitesse dans des microcanaux ont été étudiés dans cette thèse, en utilisant une caméra numérique rapide et un microsystème de Particle Image Velocimetry (micro-PIV). En particulier, le diagramme des phases gaz-liquide ont été établi dans des microcanaux carrés ; la formation des bulles en fluides tant newtoniens que non newtoniens a été étudiée en détail dans plusieurs configurations géométriques telles que T-jonction et flow-focusing. Les mécanismes régissant la formation d'une bulle ont été modélisés pour chaque étape : expansion, amincissement et rupture. L'étape amincissement de la traînée d'une bulle est notamment contrôlée par une pression orthogonale qui dépend du débit du liquide. Dans le cadre de flow-focusing, le mécanisme de la rupture du film gazeux peut être décrit par une loi d'échelle reliant l'épaisseur minimale du film au temps restant juste avant la rupture avec un exposant $1/3$. Le caractère non newtonien de fluides PAAm allonge la traînée d'une bulle par rapport aux fluides newtoniens. Enfin, l'étude de la coalescence entre bulles a été entreprise à l'échelle microscopique ainsi que le comportement complexe des trains de bulles dans des réseaux de microcanaux.

Mots clés : écoulements gaz-liquide ; microcanaux ; formation d'une bulle ; mécanisme et comportement des bulles ; loi d'échelle ; mesures micro-PIV

ABSTRACT

Gas-liquid two-phase flow is an important research project in microfluidics. The gas-liquid two-phase flow, the bubble formation and moving behaviours in microchannels were investigated, by using a high speed digital camera and a micro Particle Image Velocimetry (micro-PIV). The gas-liquid two-phase flow in vertical rectangular microchannels was investigated and a flow pattern map was constructed; the bubble formation in both Newtonian and non-Newtonian fluids in cross-flowing microfluidic T-junctions and flow-focusing devices was investigated; the bubble formation process could be divided into expansion, collapse and pinch-off stages; the collapse speed of the gaseous thread in the second stage is controlled by the squeezing pressure, and is proportional to the liquid flow rates; while the minimum width of the neck of the gaseous thread in the third stage for bubble formation in flow-focusing devices could be scaled with the remaining time to the ultimate pinch-off as a power law relationship with an exponent of $1/3$; the PAAm solutions prolong the gaseous thread in the tangential direction of the neck; bubble coalescence in a microchannel with an expansion section was studied; the bubble behaviour in a microchannel with a loop was also investigated.

Keywords: gas-liquid flows; microchannels; formation of a bubble; mechanism and behaviour of bubbles; scaling law; micro-PIV measurements