

DOI:10.3969/j.issn.1003-5060.2025.04.017

# 基于 VOF-CSF 方法的微流控法生成 双乳液滴过程数值研究

牛玉龙, 杨磊, 朱江

(合肥工业大学 汽车与交通工程学院, 安徽 合肥 230009)

**摘要:**文章采用体积函数法和连续表面力(volume of fluid-continuum surface force, VOF-CSF)数值模型对同轴对冲聚焦玻璃毛细管生成双乳液滴的过程进行数值模拟,并通过文献实验照片对照的方式确定数值模型的合理性,且能够预测双乳液滴形成的动力学过程;同时研究了黏度、界面张力及流量对液滴大小、流动形态及断裂位置的影响。结果表明:外相以及内相黏度过小会对双乳液滴的生成造成明显影响,前者生成更小的双乳液滴,后者会在合适的流动比下生成多核液滴;界面张力的增加会抑制相关界面的射流,使流体从喷射态朝滴态转变,且较易生成液滴;外相流量主要影响液滴的粒径大小,流量越大,粒径减小,而中间相流量和内相流量的变化主要影响液滴的核壳比。

**关键词:**双乳液滴;微流控法;数值模拟;同轴流动

**中图分类号:**O359 **文献标志码:**A **文章编号:**1003-5060(2025)04-0537-08

## Numerical study of microfluidic method for the generation of double emulsion droplets based on VOF-CSF method

NIU Yulong, YANG Lei, ZHU Jiang

(School of Automobile and Traffic Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China)

**Abstract:** In this paper, the volume of fluid-continuum surface force (VOF-CSF) numerical model was used to numerically simulate the generation process of double emulsion droplets in coaxially hedged focusing glass capillaries. The rationality of the numerical model was confirmed by comparing the experimental photos in the literature and calculated results, which could predict the kinetic process of double emulsion droplet formation. The effects of viscosity, interfacial tension and flow rate on droplet size, flow pattern and fracture position were investigated. The results show that the generation of double emulsion droplets will be significantly affected by the low viscosity of the outer phase and the inner phase. The former will generate smaller double emulsion droplets, while the latter will generate multi-nucleated droplets at a suitable flow ratio. The increase of the interfacial tension will inhibit the jet at the relevant interface, so that the fluid pattern changes from the jet state to the drop state, which makes easier generation of the droplets. The outer phase flow rate mainly affects the size of the droplets. The larger the flow rate is, the smaller the size is, while the change of the flow rate of the middle phase and the inner phase mainly affects the core-shell ratio of the droplets.

**Key words:** double emulsion droplet; microfluidic method; numerical simulation; co-flowing

收稿日期:2022-04-21;修回日期:2022-05-17

基金项目:安徽省自然科学基金资助项目(JZ2019AKZR0218)

作者简介:牛玉龙(1996—),男,河北邯郸人,合肥工业大学硕士生;

杨磊(1983—),男,安徽六安人,博士,合肥工业大学讲师,硕士生导师,通信作者, E-mail: Yanglei\_seu@hfut.edu.cn.

双乳液滴<sup>[1]</sup>是由一种分散相液滴内部包含着另一种更小尺寸的分散相液滴所构成,其独特的核壳结构可以暂时或永久地保护壳内材料。因此,以双乳液滴为模板生成的功能性微粒被广泛应用于活性物质包封、功能材料制备等领域。生产双乳液滴的传统方法有高速搅拌法、界面聚合法、膜乳化法、逐层沉积法等。通过传统方法制备出的液滴由于工艺上的限制无法精确控制液滴尺寸及其内部结构,因此,为得到良好的单分散性、精确结构及高封装率的双乳液滴,目前最具发展前景的是微流控法<sup>[2]</sup>。通常微流控装置主要分为基于平面微通道的准二维装置和基于毛细管或非平面的三维装置 2 种。因为在准二维装置中各相流体的流动均在同一平面上,连续相和离散相均会与通道壁面产生接触,所以装置壁面的润湿性会对双乳液滴的生成造成影响。而在三维装置中,分散相完全被连续相所包围,因此可以防止通道壁面润湿性对液滴造成的影响。通过微流控不同的几何结构(T 形管 (t-junction)、共流 (co-flowing)和流动聚焦 (flow-focusing))都可以精确控制双乳液滴的生成形态。

文献[3]首次利用同轴玻璃毛细管微流控装置一步法生成了单分散性较好的双乳液滴,这种装置结合了共流和对冲流动聚焦结构,使用外相流体同时对内相和中间相流体进行剪切,液滴包裹性较好,并探究了外相流速对其液滴尺寸生成的影响规律;文献[4]通过实验研究发现,同轴毛细管生成复合液滴的外径主要取决于外相的流速和黏度,而内径可以通过调节内相、中间相流速来控制,且对内相更敏感;文献[5]通过实验研究同轴微流控装置生产双乳液滴,其内液滴的脱落加速了外液滴的脱落,加快了双乳液滴的形成过程,而且流量的调节能够主动控制内、外液滴的大小和内液滴被包裹的数量。

除实验研究之外,基于计算流体力学 (computational fluid dynamics, CFD) 的数值研究提供了更详细的流场信息,有助于理解液滴形成的潜在流体力学机理。文献[6]通过使用数值模拟的方法成功复现文献[3]中的一些实验结果,在扩散界面框架下采用自适应网格划分的有限元方法,对轴对称流动聚焦装置中简单射流和复合射流的破碎进行了数值模拟,并研究了流动条件、黏度比和黏弹性的影响;而文献[7-8]建立了体积函数法和连续表面力 (volume of fluid-continuum surface force, VOF-CSF) 数值模型,并模拟了同轴对

冲流动聚焦结构的微流控芯片中双乳液滴的生成过程,发现流量、流体性质和几何结构共同影响双乳液滴的尺寸和生成频率,通过流量调节可以精确操控生成的双乳液滴尺寸、核壳比等结构;文献[9]建立了同轴共流-流动聚焦结构的流动模型,并且指出相较于轴对称共流结构,流动聚焦结构会生成更小尺寸的液滴和得到更高的生成速率,且孔口半径在双乳液滴形成中起着重要作用,而孔口长度对液滴生成状态的影响不大。

尽管基于微流控技术制备双乳液滴存在明显优势,但目前此类研究多偏向于应用,侧重采用不同的方法实现双重液滴的生成,而有关生成机理和参量分析得不多。综上,本文使用 Fluent 软件建立 VOF-CSF 数值模型,模拟同轴对冲流动聚焦结构生成双乳液滴的生成过程,并研究流速、物性参数和接触角对双乳液滴流动形态、断裂位置及粒径大小的影响。

## 1 数值模型

基于玻璃毛细管微流控芯片的流动通道是轴对称结构,因此本模型采用二维轴对称数值模型,并用有限体积法对其建立瞬态压力分离算法求解控制方程。

计算模型采用 VOF-CSF 数值模型,以模拟玻璃毛细管微流体装置中的双乳液滴的形成过程。连续性方程为:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \rho \left( \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} \right) = 0 \quad (1)$$

动量方程为:

$$\rho \left( \frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} + w \frac{\partial u}{\partial z} \right) = -\frac{\partial p}{\partial x} + \mu \left( \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right) + F_x \quad (2)$$

$$\rho \left( \frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} + w \frac{\partial v}{\partial z} \right) = -\frac{\partial p}{\partial y} + \mu \left( \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right) + F_y \quad (3)$$

$$\rho \left( \frac{\partial w}{\partial t} + u \frac{\partial w}{\partial x} + v \frac{\partial w}{\partial y} + w \frac{\partial w}{\partial z} \right) = -\frac{\partial p}{\partial z} + \mu \left( \frac{\partial^2 w}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial z^2} \right) + F_z \quad (4)$$

其中: $u, v, w$  分别为直角坐标系  $x, y, z$  方向上的速度分量; $p, t, \mu, \rho$  分别为压力、时间、动力黏度和密度; $F_x, F_y, F_z$  为表面张力源项在  $x, y, z$  方向的分量,只存在于包含界面的控制单元内。

VOF 方法是建立在欧拉 (Euler) 网格下的界

面追踪方法。该方法中,互不相容的流体组分共用一套动量方程,并通过引入相体积分数  $f$  这一变量来实现对计算域内相间界面的追踪。相体积分数  $f$  决定了单元格中被某种流体所填充的部分。

当  $f=0$  时,该单元格全部被分散相占据;当  $f=1$  时,该单元格全部被连续相占据;当  $0 < f < 1$  时,该单元格中存在界面。在本文的模型中,单元格中3种相的体积分数之和为1,即  $f_1 + f_2 + f_3 = 1$ ,  $f_1, f_2, f_3$  分别为内相、中间相和外相的体积分数。因此在三相混合单元中,有关三相混合黏度和密度的计算公式为:

$$\mu = f_1\mu_1 + f_2\mu_2 + f_3\mu_3 \quad (5)$$

$$\rho = f_1\rho_1 + f_2\rho_2 + f_3\rho_3 \quad (6)$$

CSF 模型流体表面张力  $F_{vol}$  的表达式如下:

$$\mathbf{F}_{vol} = \sigma \nabla f \quad (7)$$

其中:  $\sigma$  为表面张力系数;  $\kappa$  为交互面曲率,其计算公式如下:

$$\kappa = \nabla \cdot \mathbf{n} \quad (8)$$

其中,  $\mathbf{n}$  为定义的单位法向量,其公式如下:

$$\mathbf{n} = \frac{\nabla f}{|\nabla f|} \quad (9)$$

本文采用流体仿真软件 Fluent 模拟玻璃毛细管微流控装置中双乳液滴生成过程,其中计算模型为 VOF-CSF 和层流模型(Laminar)。为提高解的收敛性,在 Body Force Formulation 中选择 Implicit Body Force,使压力梯度和动量方程中表面张力的部分平衡。压力-速度耦合采用 SIMPLE 算法;采用 Green-Gauss Cell-Based 的梯度插值方案;压力插值采用 PRESTO! 格式进行;空间离散选择二阶迎风格式;体积分数采用 Geo-Reconstruct 格式。为减少计算时间,初始的 500 个时间步长采用  $10^{-8}$  s,之后采用库朗数为 0.35 的变时间步长。入口边界条件采用速度入口,出口边界条件为压力出口,初始空间内充满外相液体,并使用 patch 功能将图 1 所示的模型几何结构示意图方框内充满中间相液体,便于减少计算时间和计算量。

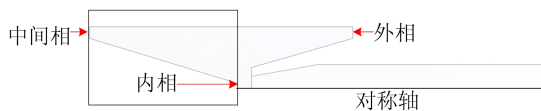


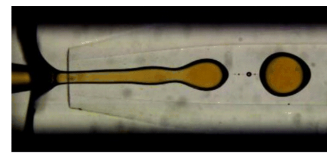
图1 模型几何结构示意图

采用所述数值模型对文献[10]中玻璃毛细管微流控装置中生成双乳液滴的过程进行验证,实

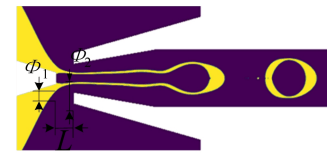
验结果如图 2a 所示,数值模型计算出的相云图如图 2b 所示。

采用 Image-pro plus 软件对生成的双乳液滴粒径进行测量,实验液滴直径为  $286 \mu\text{m}$ ,数值模拟液滴直径为  $273 \mu\text{m}$ ,与实验数据相比仿真误差在 5% 以内,液滴形态的一致性验证了本文建立的数值模型的合理性,该模型能够预测双乳液滴形成的动力学过程。

在单元网格尺寸分别为 1、2、4、5、6、7  $\mu\text{m}$  条件下进行网格独立性检验,模拟结果表明当网格单元尺寸小于 6  $\mu\text{m}$  时,生成的双乳液滴粒径几乎不变,其相对误差小于 1%。为了减少计算量和更加精确,本模型选择在单元网格尺寸为 4  $\mu\text{m}$  条件下模拟双乳液滴的生成过程。数值模型相关尺寸参数  $\Phi_1, \Phi_2, L$  分别为 60、200、120  $\mu\text{m}$ ,其中  $\Phi$  为直径,  $L$  为长度。



(a) 文献[10]中生成的双乳液滴



(b) 本文数值模拟生成的双乳液滴

图2 文献[10]与本文模拟结果实验对照图

模型中参数设置如下:  $\rho_i = 753 \text{ kg/m}^3, \rho_m = 1019 \text{ kg/m}^3, \rho_o = 755 \text{ kg/m}^3; \mu_i = 0.055 \text{ Pa} \cdot \text{s}, \mu_m = 0.080 \text{ Pa} \cdot \text{s}, \mu_o = 0.074 \text{ Pa} \cdot \text{s}; \sigma_{im} = 5.4 \text{ mN/m}, \sigma_{mo} = 2.7 \text{ mN/m}; Q_i = 150 \mu\text{L/h}, Q_m = 100 \mu\text{L/h}, Q_o = 1000 \mu\text{L/h}$ 。其中,下角标 o、m、i 分别代表外相(outer)、中间相(middle)、内相(inner)流体;  $\rho, \mu, \sigma, Q$  分别为密度、动力黏度、界面张力和流量。

## 2 结果与讨论

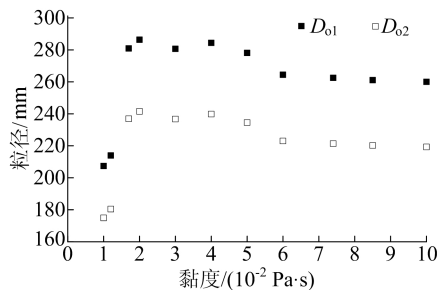
改变三相流体的流动参数会使双乳液滴的生成过程发生变化,其流动形态、粒径大小以及断裂位置都会发生改变,而这些变化对双乳液滴的生成有着重大的影响。因此,本节从黏度、界面张力、流量、壁面接触角和密度 5 个方面研究物理参数的变化对双乳液滴的流动形态、粒径大小以及断裂位置方面的影响,探究双乳液滴生成的变化

规律。

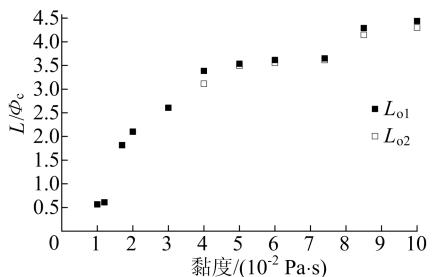
2.1 黏度对双乳液滴生成的影响

通过数值模拟研究不同黏度条件下双乳液滴生成过程中粒径大小、流场形态以及断裂位置的变化规律。计算过程中,内相密度  $\rho_i$ 、中间相密度  $\rho_m$  和外相密度  $\rho_o$  分别为  $753, 1\ 019, 755\ \text{kg/m}^3$ ; 内中界面张力  $\sigma_{im}$  和中外界面张力  $\sigma_{mo}$  分别为  $5.4, 2.7\ \text{mN/m}$ ; 内相流量  $Q_i$ 、中间向流量  $Q_m$ 、外相流量  $Q_o$  分别为  $150, 100, 1\ 000\ \mu\text{L/h}$ 。若不涉及相关黏度变化,内相黏度  $\mu_i$ 、中间相黏度  $\mu_m$ 、外相黏度  $\mu_o$  分别为  $0.055, 0.080, 0.074\ \text{Pa}\cdot\text{s}$ 。

外相黏度对双乳液滴生成过程中粒径大小以及断裂位置的影响如图 3 所示。



(a) 双乳液滴粒径随外相黏度的变化



(b) 双乳液滴断裂位置随外相黏度的变化

图 3 外相黏度对液滴粒径和断裂位置的影响

图 3a 所示为生成的双乳液滴外径  $D_{o1}$  和内径  $D_{o2}$  随外相黏度  $\mu_o$  的变化图。从图 3a 可以看出:当  $\mu_o > 0.015\ \text{Pa}\cdot\text{s}$  时,外径  $D_{o1}$  和内径  $D_{o2}$  总体均呈现略微减小的趋势;当  $\mu_o > 0.060\ \text{Pa}\cdot\text{s}$  时,双乳液滴粒径的大小几乎不变;当  $\mu_o$  在  $0.010\sim 0.015\ \text{Pa}\cdot\text{s}$  范围内时,粒径较小,这是由于双乳液滴的流动形态是滴态,受几何结构的限制,使生成的液滴粒径较小,但因未考虑表面活性剂,故在数值模拟生成双乳液滴的过程中液滴会发生融合现象。

图 3b 所示为生成双乳液滴时中间相流体及内相流体断裂时的位置随外相黏度的变化图。为了更清晰地表达相对关系,采用无量纲数  $L/\Phi_o$  来表达相对位置,  $L_1$  表示中间相相对断裂位置,

$L_2$  表示内相相对断裂位置。当  $\mu_o$  增加时,外相黏性在交界面较高的黏性力会导致复合射流远收缩口,使中间相流体断裂距离  $L_{o1}$  和内相流体断裂距离  $L_{o2}$  同时增加,但是 2 种流体的断裂距离差值 ( $\Delta L = L_{o1} - L_{o2}$ ) 几乎为 0。

不同外相黏度下的相云图如图 4 所示。从图 4 可以看出:在较小的  $\mu_o$  条件下,滴态状态下可以高效生成粒径较小的双乳液滴;在较大的  $\mu_o$  条件下,粒径大小基本没有变化,但是断裂位置  $L$  会向下游延伸。

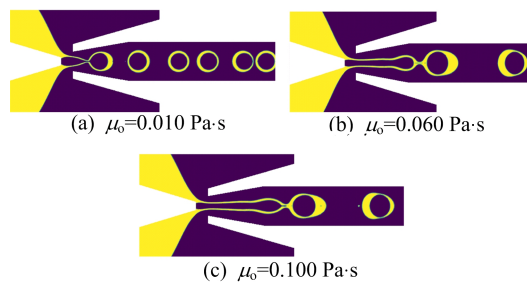
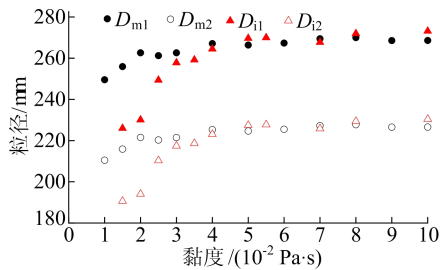
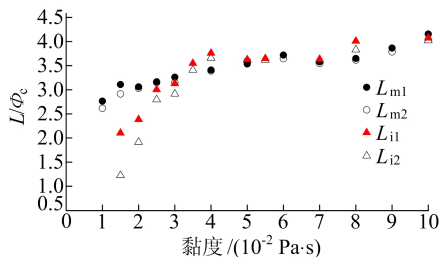


图 4 不同外相黏度下的相云图

中间相及内相黏度对双乳液滴生成过程中粒径大小以及断裂位置的影响如图 5 所示。



(a) 双乳液滴粒径随中间相及内相黏度的变化



(b) 双乳液滴的断裂位置随中间相及内相黏度的变化

图 5 中间相及内相黏度对液滴粒径和断裂位置的影响

图 5a 所示为生成的双乳液滴外径  $D_1$  和内径  $D_2$  随中间相黏度  $\mu_m$  与内相黏度  $\mu_i$  的变化图。从图 5a 可以看出,随着  $\mu_m$  和  $\mu_i$  的增加,流体形态由滴态朝喷射态转变,当  $\mu_m$  和  $\mu_i$  都大于  $0.040\ \text{Pa}\cdot\text{s}$  时,双乳液滴的尺寸几乎不变。但是内相流体和中间相流体的黏性力会增加,导致内相与中间相

流体的复合射流向下游方向延伸,从而导致  $L_1$ 、 $L_2$  都变大。

$L_1$ 、 $L_2$  的变化趋势如图 5b 所示。从图 5b 可以看出:当  $\mu_m$  小于  $0.020 \text{ Pa}\cdot\text{s}$  时,因为  $\mu_o/\mu_m$  较大,夹断复合射流所需要的力比高  $\mu_m$  条件下所需要的力小,所以会生成较小的双乳液滴;与  $\mu_m$  较小相同,内相黏度  $\mu_i$  过小,会导致中间相流体夹断内相流体所需的力较小,从而在中间相流体域内生成多个内相液滴。

不同内相黏度下的相云图如图 6 所示。从图 6 可以看出:当  $\mu_i=0.010 \text{ Pa}\cdot\text{s}$  时,无法生成双乳液滴;当  $\mu_i=0.020 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ,在合适的流量比条件下会生成多核液滴。

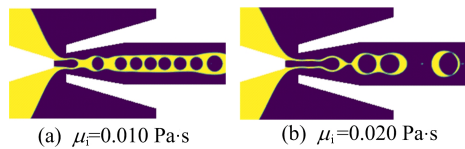


图 6 不同内相黏度下的相云图

### 2.2 界面张力对双乳液滴生成的影响

通过数值模拟研究不同界面张力条件下双乳液滴生成过程中粒径大小、流场形态和断裂位置的变化规律。计算过程中,内相密度  $\rho_i$ 、中间相密度  $\rho_m$ 、外相密度分别为  $753, 1\ 019, 755 \text{ kg/m}^3$ ; 内相黏度  $\mu_i$ 、中间相黏度  $\mu_m$ 、外相黏度  $\mu_o$  分别为  $0.055, 0.080, 0.074 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ; 内相流量  $Q_i$ 、中间向流量  $Q_m$ 、外相流量  $Q_o$  分别为  $150, 100, 1\ 000 \mu\text{L/h}$ 。若不涉及相关界面张力变化,内中界面张力  $\sigma_{im}$  和中外界面张力  $\sigma_{mo}$  分别为  $5.4, 2.7 \text{ mN/m}$ 。

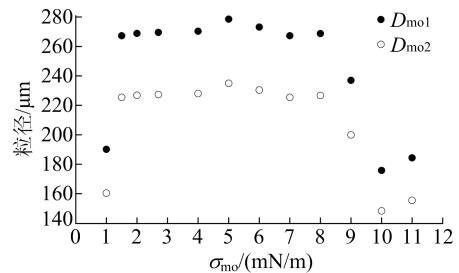
不同的界面张力对双乳液滴生成过程中粒径大小以及断裂位置的影响如图 7 所示。

通过数值模拟发现,流场中外相与内相被中间相隔开,两相并不接触,因此内外界面张力的改变并不影响双乳液滴的生成状态。

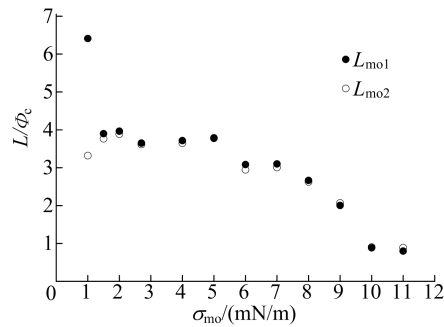
图 7a 所示为生成的双乳液滴外径  $D_{mo1}$  和内径  $D_{mo2}$  随中外界面张力  $\sigma_{mo}$  的变化图。从图 7a 可以看出:当  $\sigma_{mo}=1.0 \text{ mN/m}$  时,液滴粒径较小,抵抗剪切能力越弱,导致其生成的双乳液滴呈现不规则的形状;当  $\sigma_{mo}$  在  $1.5\sim 8.0 \text{ mN/m}$  范围内时,粒径几乎没有变化;当  $\sigma_{mo}>8.0 \text{ mN/m}$  时,流体流动形态是滴态,生成的双乳液滴粒径较小。

图 7b 所示为生成的双乳液滴中间相流体断裂位置随  $\sigma_{mo}$  的变化图。从图 7b 可以看出: $\sigma_{mo}$  增大,几乎不影响  $\Delta L$ ,双乳液滴生成时,内相射流

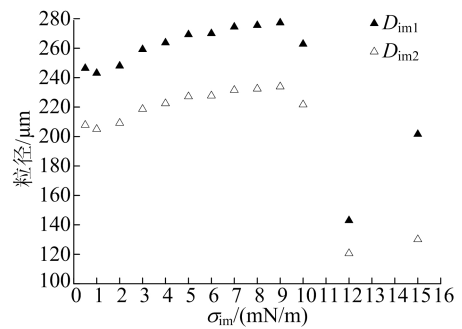
与中间相射流同时被夹断,但是较大的界面张力会抑制中间相射流的喷射态,从而影响复合射流的流动形态,使复合射流向收缩口方向收缩, $L_{mo1}$  和  $L_{mo2}$  都减小,从而使流体形态由喷射态朝滴态转变;当  $\sigma_{mo}>11.0 \text{ mN/m}$  时,由于模拟的局限性无法稳定地生成双乳液滴,中间相流体与外界面流体的交界面不稳定。



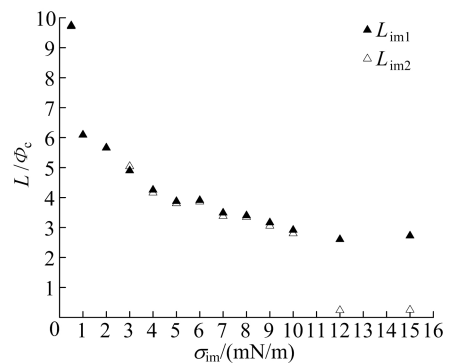
(a) 双乳液滴粒径随中外界面张力的变化



(b) 双乳液滴断裂位置随中外界面张力的变化



(c) 双乳液滴粒径随内中界面张力的变化



(d) 双乳液滴断裂位置随内中界面张力的变化

图 7 界面张力对液滴粒径和断裂位置的影响

图 7c 所示为生成的双乳液滴外径  $D_{m1}$  和内径  $D_{m2}$  随内中界面张力  $\sigma_{im}$  的变化图。从图 7c 可以看出:当  $\sigma_{im}$  在 0.5~9.0 mN/m 范围内,双乳液滴的粒径尺寸增大了约 12%;当  $\sigma_{im} > 9.0$  mN/m 时,液滴粒径显著减小;而当  $\sigma_{im} = 15.0$  mN/m 时,过大的  $\sigma_{im}$  使得内相流体提前在中间相流场内断裂,从而形成多核液滴,但由于未考虑表面活性剂的原因,在数值模拟生成双乳液滴的过程中,模拟的内相液滴会发生融合现象。

双乳液滴生成云图如图 8 所示。从图 8 可以看出,较大的界面张力会抑制其交界面的延伸,因此在图 7d 中,当  $\sigma_{im} > 10.0$  mN/m 时,会使内相流体相对断裂位置  $L_2$  变小,增大了内相液滴的生成频率,在合适流量下形成多核液滴。



图 8 不同界面张力下的相云图

### 2.3 流量对双乳液滴生成的影响

通过数值模拟研究不同流量条件下双乳液滴生成过程中粒径大小、流场形态以及断裂位置的变化规律。

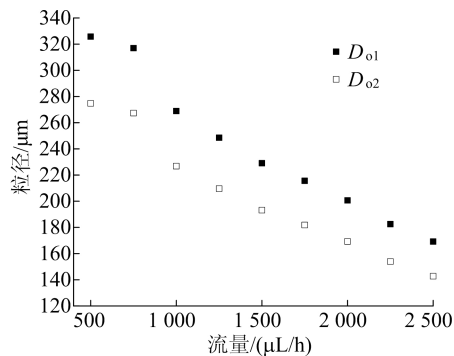
计算过程中,内相密度  $\rho_i$ 、中间相密度  $\rho_m$ 、外相密度分别为 753、1 019、755 kg/m<sup>3</sup>;内相黏度  $\mu_i$ 、中间相黏度  $\mu_m$ 、外相黏度  $\mu_o$  分别为 0.055、0.080、0.074 Pa·s;内中界面张力  $\sigma_{im}$  和中外界面张力  $\sigma_{mo}$  分别为 5.4、2.7 mN/m;若不涉及相关流量变化,内相流量  $Q_i$ 、中间向流量  $Q_m$ 、外相流量  $Q_o$  分别为 150、100、1 000  $\mu$ L/h。

不同流量对双乳液滴生成过程中粒径大小以及断裂位置的影响如图 9 所示。

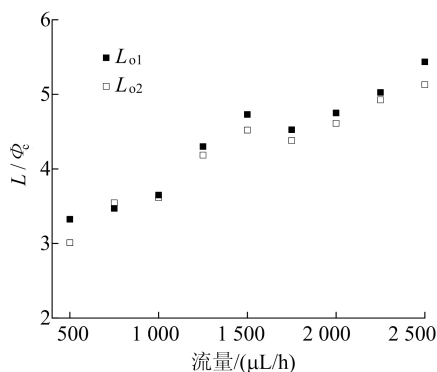
图 9a 所示为外相流量与液滴粒径的关系图。从图 9a 可以看出,随着外相流量  $Q_o$  的增大,模拟生成的粒径显著减小。

由图 9b 可知,随着外相流量  $Q_o$  的增大,双乳液滴的断裂位置  $L_{o1}$  和  $L_{o2}$  会显著增加,双乳液滴的流动形态从滴态转为喷射态。这是由于外相流量的增加导致其在外相与中间相的交界面处产生更大的黏性力,在抵抗双乳液滴颈部断裂的同时,又拖拽着复合射流向下流运动。当外相流速在 500~2 500  $\mu$ L/h 范围内时,生成的双乳液滴粒径大小均一性很好;而当流速大于 2 500  $\mu$ L/h

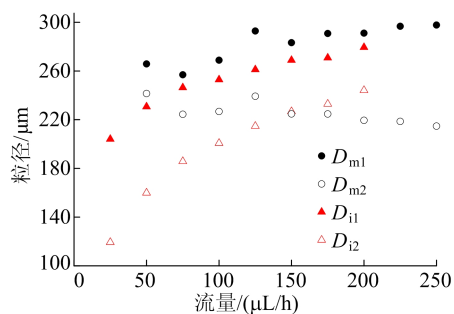
时,由于 Rayleigh-Plateau 不稳定性,在较强的流场扰动条件下,液滴发生破裂,液滴直径接近射流直径,但是生成的双乳液滴的单分散性较差,会生成多种粒径不同的液滴。



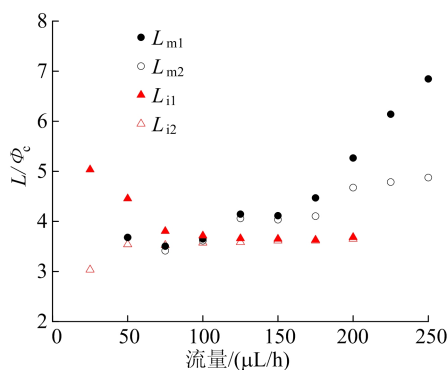
(a) 双乳液滴粒径随外相流量的变化



(b) 双乳液滴的断裂位置随外相流量的变化



(c) 双乳液滴粒径随中间相及内相流量的变化



(d) 双乳液滴断裂位置随中间相及内相流量的变化

图 9 流量对液滴粒径和断裂位置的影响

在数值模拟过程中,会无规律地生成卫星液滴,这些液滴一部分是单核卫星液滴,一部分是双核卫星液滴,且卫星液滴生成位置在颈部断裂处,颈部前端靠近收缩口方向,而颈部末端靠近双乳液滴处,颈部两端同时由于外相流体的挤压力断裂,导致颈部残留液体收缩形成卫星液滴。卫星液滴是在微通道的对称轴附近生成,而且体积很小,因此相较于主液滴有着更高的速度,在大部分情况下卫星液滴会相互融合或者追赶上生成的主液滴与之融合。

图9c所示为中间相流量 $Q_m$ 和内相流量 $Q_i$ 与液滴粒径的关系图。从图9c可以看出:当 $Q_m$ 在25~250  $\mu\text{L}/\text{h}$ 范围内,随着中间相流速的增加,液滴粒径外径 $D_{m1}$ 增加,而液滴内径 $D_{m2}$ 减小,总体液滴粒径增大16%,而且中间相流量增加的同时会导致惯性力增加,从而在液滴被夹断之前有更多的中间相液体流入液滴中,导致液滴外径直径的增加,因此生成的双乳液滴壳层较厚;当 $Q_i$ 在25~200  $\mu\text{L}/\text{h}$ 范围内,液滴外径 $D_{i1}$ 和液滴内径 $D_{i2}$ 显著增大,总体液滴粒径增大约37%,由于内相流量与中间相流量的比值 $Q_i/Q_m$ 越来越小,导致生成的单个液滴中内相流体与中间相流体的壁厚变大,从而使生成的双乳液滴壳层越来越薄。

通过数值模拟发现:若内相流量 $Q_i$ 过小,则在模拟生成过程中出现单乳液滴与双乳液滴周期性地交替生成的现象;若内相流体的流量 $Q_i$ 过大,在生成过程中中间相流体无法完全包裹住内相流体,导致生成失败。

由图9d可知,随着中间相流量的增加,其断裂位置 $L_{m1}$ 和 $L_{m2}$ 均增大,但是当 $Q_m > 150 \mu\text{L}/\text{h}$ 时,过高的中间相流速对内相射流给予更高的剪切力,导致内相射流提前断裂,形成内相液滴,因此 $\Delta L$ 会增大。且与外相流量 $Q_o$ 增加形成的窄喷射不同,中间相流量 $Q_m$ 增加会导致复合射流变得更宽更长,从而形成宽喷射。而内相流量 $Q_i$ 增加,使其断裂位置 $L_{i2}$ 增加,断裂位置 $L_{i1}$ 减小,断裂差值 $\Delta L$ 也在减小,当 $Q_i > 100 \mu\text{L}/\text{h}$ 时,断裂位置几乎不变。

本文通过模拟还发现:在内相与外相流量之和 $Q_{\text{SUM}}$ 不变的条件下,内相流量与中间相流量之比 $Q_i/Q_m$ 的数值在一定范围内的变化并不会影响粒径大小;然而过大 $Q_i/Q_m$ 会导致中间相的壳层较薄,在模拟过程中易发生内相穿出中间相或者外相包裹不完整的现象;过小的 $Q_i/Q_m$ 导致内相与中间相生成的频率不匹配,从而导致间歇性

交替生成单乳液滴和双乳液滴。

## 2.4 接触角、密度对双乳液滴生成的影响

通过模拟不同大小的壁面接触角发现,壁面接触角仅影响中间相流体与外相流体分界面的形状,并不影响双乳液滴的流动形态、粒径大小及断裂位置。

在800~1 200  $\text{kg}/\text{m}^3$ 范围内更改外相密度对双乳液滴的生成过程进行数值模拟,结果表明密度几乎不影响双乳液滴生成过程以及粒径大小。这是由于流体的流速低、密度低,Navier-Stokes方程中包含的密度对流项数值可以忽略不计。同样对中间相密度及内相密度在800~1 200  $\text{kg}/\text{m}^3$ 范围内进行双乳液滴生成过程的数值模拟,得到的结论相同。

## 3 结 论

本文采用VOF-CSF数值模型研究了同轴对冲聚焦玻璃毛细管中双乳液滴的生成过程,探究和分析了流体的物性参数以及流体流量对双乳液滴形成过程的影响,得出的结论如下。

1) 三相的流体黏度、各流体相之间的界面张力、流体的流量都会影响双乳液滴的生成。但外壁面接触角的改变仅影响外相流体与中间相流体在主通道内的交界面,而在粒径大小以及断裂位置等方面几乎没有影响;密度几乎不会对双乳液滴的生成造成影响。

2) 三相黏度中外相以及内相黏度过小会对双乳液滴的生成造成明显的影响,前者生成更小的双乳液滴,后者会在合适的流动比下生成多核液滴;外相与中间相黏度增大会拉伸复合射流,而内相黏度增大到一定程度却几乎不会影响双乳液滴的流动形态。

3) 内外界面张力 $\sigma_o$ 几乎不影响双乳液滴的生成形态,而中外界面张力 $\sigma_{mo}$ 和内中界面张力 $\sigma_{im}$ 的增大会分别抑制中间相和内相的喷射态。数值模拟中,若 $\sigma_{mo}$ 较大,则生成的双乳液滴较小;若 $\sigma_{im}$ 过小,则会生成多核液滴。

4) 外相流量 $Q_o$ 的增加会使双乳液滴粒径显著减小;中间相流量 $Q_m$ 的增加会增加壁厚,减小核壳比;内相流量 $Q_i$ 的增加,会减小壳厚,增大核壳比。在 $Q_{\text{SUM}}$ 不变的情况下,数值模拟发现改变 $Q_i/Q_m$ 的比值,双乳液滴总体粒径不会变化,仅改变双乳液滴的液滴内径与壳厚。

(下转第548页)

## [参 考 文 献]

- [1] SHAMIR A. How to share a secret[J]. Communications of the ACM, 1979, 22(11): 612-613.
- [2] BLAKLEY G R. Safeguarding cryptographic keys [C]// 1979 International Workshop on Managing Requirements Knowledge (MARK). New York: IEEE, 1979: 313-318.
- [3] HE J, EDWARD D. Multistage secret sharing based on one-way function [J]. Electronics Letters, 1994, 30(19): 1591-1592.
- [4] JACKSON W A, MARTIN K, O'KEEFE C M, et al. Ideal secret sharing schemes with multiple secrets[J]. Journal of Cryptology, 1996, 9(4): 233-250.
- [5] CHOR B, GOLDWASSER S, MICALI S, et al. Verifiable secret sharing and achieving simultaneity in the presence of faults[C]// Proceedings of the 26th IEEE Symposium on Foundations of Computer Science. Portland: IEEE, 1985: 383-395.
- [6] CHEN D, LU W, XING W W, et al. An efficient verifiable threshold multi-secret sharing scheme with different stages [J]. IEEE Access, 2019, 7: 107104-107110.
- [7] HARN L. Efficient sharing (broadcasting) of multiple secrets[J]. IEEE Proceedings-Computers and Digital Techniques, 1995, 142(3): 237-240.
- [8] MARYAM S G, MOJTABA B, CHRISTOPHE D. Threshold verifiable multi-secret sharing based on elliptic curves and Chinese remainder theorem[J]. IET Information Security, 2019, 13(3): 278-284.
- [9] WANG N, CAI Y Y, FU J S, et al. Information privacy protection based on verifiable  $(t, n)$ -threshold multi-secret sharing scheme[J]. IEEE Access, 2020, 8: 20799-20804.
- [10] HARN L, HSU C F.  $(t, n)$  Multi-secret sharing scheme based on bivariate polynomial[J]. Wireless Personal Communications, 2017, 95(2): 1495-1504.
- [11] ZHANG T, KE X Z, LIU Y X.  $(t, n)$  Multi-secret sharing scheme extended from Harn-Hsu's scheme[J]. EURASIP Journal on Wireless Communications and Networking, 2018, 2018(1): 1-4.
- [12] DIFFIE W, HELLMAN M E. New directions in cryptography[J]. IEEE Transactions on Information Theory, 1976, 22(6): 644-654.

(责任编辑 闫杏丽)

(上接第 543 页)

## [参 考 文 献]

- [1] 吴梁玉, 陈永平, 施明恒, 等. 流动聚焦微通道中双重乳液乳剂化行为研究[J]. 工程热物理学报, 2014, 35(6): 1167-1169.
- [2] 吴梁玉. 双乳液的制备及其流体动力学行为研究[D]. 南京: 东南大学, 2016.
- [3] UTADA A S, LORENCEAU E, LINK D R, et al. Monodisperse double emulsions generated from a microcapillary device[J]. Science, 2005, 308(5721): 537-541.
- [4] PAN D, CHEN Q, CHEN S, et al. Experimental study on millimeter-scale W1/O/W2 compound droplets formation in a co-flowing device with two-step structure [J]. Chemical Engineering Science, 2020, 216: 115493.
- [5] LU P, WU L, LIU X. Visualization study of oil-in-water-in-oil (O/W/O) double emulsion formation in a simple and robust co-flowing microfluidic device [J]. Micromachines, 2017, 8(9): 268.
- [6] ZHOU C, YUE P, FENG J J. Formation of simple and compound drops in microfluidic devices[J]. Physics of Fluids, 2006, 18(9): 092105.
- [7] 刘赵森, 杜宇, 逢燕. W/O/W 型双乳液滴在微通道内生成过程的研究[J]. 分析化学, 2018, 46(3): 324-331.
- [8] NABAVI S A, VLADISAVLJEVIĆ T, GU S, et al. Double emulsion production in glass capillary microfluidic device: parametric investigation of droplet generation behaviour [J]. Chemical Engineering Science, 2015, 130: 183-196.
- [9] LIU X, WU L, ZHAO Y, et al. Study of compound drop formation in axisymmetric microfluidic devices with different geometries [J]. Colloids and Surfaces A (Physicochemical and Engineering Aspects), 2017, 533: 87-98.
- [10] MICHELON M, LEOPÉRCIO B C, CARVALHO M S. Microfluidic production of aqueous suspensions of gellan-based microcapsules containing hydrophobic compounds [J]. Chemical Engineering Science, 2020, 211: 115314.

(责任编辑 胡亚敏)