

非极性小分子有机液体在微管道中的流量特性¹⁾

李战华 周兴贝 朱善农 *

(中国科学院力学研究所, 非线性力学国家重点实验室, 北京 100080)
*(中国科学院化学研究所, 高分子物理和化学国家重点实验室, 北京 100080)

摘要 用去离子水及有机液体在内径约为 $25\mu\text{m}$ 的石英圆管内进行了流量特性实验。液体分子量范围为 $18\sim160$, 动力黏性系数的范围为 $0.5\sim1\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 。实验雷诺数范围为 $Re < 8$ 。所用有机液体为: 四氯化碳、乙基苯及环己烷都是非极性液体, 其分子结构尺度小于 1 nm 。实验结果表明, 在定常层流条件下, 圆管内的液体流量与两端压力差成正比, 其压力 - 流量关系仍符合经典的 Hagen-Poiseuille 流动。这说明非极性小分子有机液体在本实验所用微米尺度管道中其流动规律仍符合连续介质假设。鉴于微尺度流动实验的特殊性, 文中还介绍了微流动实验装置, 分析了微尺度流动测量误差来源及提高测量精度的措施。

关键词 微管道流动, 有机液体, 非极性液体, 微机械系统, 尺度效应

引 言

随着微机械系统 (MEMS) 研究的深入发展, 微尺度下的流动问题已日益受到研究人员的重视。Ho & Tai^[1] 及 Gal-el-Hak^[2] 详细介绍了实验中已观察到的流动微尺度效应。宏观条件下流动的特征尺度一般在 $\text{cm}\sim\text{m}$ 之间, MEMS 器件常用的流动特征尺度范围为 $\mu\text{m}\sim\text{mm}$ 。特征尺度缩小了 3 个量级。流动特征尺度与流动介质的内禀特征尺度更为接近时, 流动规律是否仍然符合连续介质假设条件, 是目前 MEMS 和力学理论界十分关心的问题。

在气体动力学研究中, 已有将这两个特征尺度联系在一起的做法, 即 Knudsen 数: $K_n = \ell/L$, 这里 L 是流动的特征尺度, ℓ 是气体分子的平均自由程。自 1909 年 Knudsen 数出现以来, 气体动力学的大量研究结果使得 K_n 数的大小成为判断 N-S 方程对流动适用范围的依据: $K_n < 10^{-2}$ 时连续介质假设成立; $K_n > 10$ 说明流动为自由分子流状态^[2]。而液体流动的研究还远远没有达到这种程度。因为液体本身结构复杂, 分子自由程的定义不清楚。如何确定液体分子的特征尺度(凝聚尺度)、如何找到类似 K_n 数的无量纲参数将液体流动的宏观特征尺度与微观特征尺度相联系, 是微尺度流动理论需要解决的问题。

液体在细小管道中流动的流量 - 压力特性最早是由法国医生 Poiseuille 开始研究的。1842 年他测量了圆柱管内血液流量与压力差的关系, 得到了著名的 Poiseuille 定律。此方程一直作为细管道流动特性的依据。但是近年来 MEMS 器件中的管道的尺度近于微米量级。在这种微尺度管道中, 流动是否符合 N-S 方程已引起关注, 已有人作了一些研究工作。Jiang 等^[3] 用去离子水在 $8\sim40\mu\text{m}$ 直径的圆管作实验, 测量了流动损失系数随 Re 数的变化, 实验结果符合 N-S 方程预测的理论值。Makihara 等^[4] 用不同黏性系数的硅油在 $11.8\sim50\mu\text{m}$ 的圆管中进行

2001-04-25 收到第一稿, 2001-09-04 收到修改稿。

1) 国家基础研究发展计划课题 (G1999033106) 和国家攀 A 项目资助。

同样的实验。实验雷诺数 $Re < 10$ ，硅油的运动黏性系数范围是： $2.6 \times 10^{-6} \sim 4.2 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ 。他们发现，即使黏性系数比水大 400 倍的硅油，在微管道内的流动仍符合 N-S 方程的预测值。Flockhart & Dhariwal^[5] 用蒸馏水在硅梯形槽中作实验，雷诺数范围 $Re < 600$ 。实验用的梯形槽宽 1 mm，深 27 μm，长 63 μm，实验结果表明流量和压降的关系仍然符合 N-S 方程。然而也有一些实验观察到了不同的结果。Mala & Li D. 等^[6] 用水在氧化硅和不锈钢材料制成的圆管内进行流动实验，实验 Re 数达到 2500。实验表明：当管直径 $< 150 \mu\text{m}$ 时，单位管长的压降与 Re 数的关系偏离理论值。特别是 50 μm 直径的氧化硅材料圆管，在 $Re < 600$ 的范围内，单位管长的压降已明显偏离理论预测。Pfahler 等^[7] 用异丙醇液体 (isopropanol)，在宽为 100 μm，深度 $< 40 \mu\text{m}$ 的槽道内进行实验，发现液体的黏性系数减小了。上述实验结果表明，由于管径的缩小、管道的材料或液体性质不同都会引起流量 - 压力特性与经典理论的偏差，证明了微尺度效应的存在。

本文介绍了在内径约为 25 μm 的石英圆管内进行的液体流量特性实验。我们从简单液体入手，首先选用了非极性液体。同时液体分子量不宜太大，否则液体黏性太大，实验条件难以满足。因此本实验选择了一些典型的非极性、小分子有机液体，分子量为 18 ~ 160，动力黏性系数为 0.5 ~ 1 mPa·s。实验雷诺数范围为 $Re < 8$ 。针对微尺度流动与宏观流动的不同，文中详细介绍了微流动实验台，分析了流动测量误差的来源及提高测量精度的措施。

1 圆管内液体流动的经典理论模型

微管道中的液体低速流动特点是：层流流动。微管道中的流动相应的雷诺数 Re 较小，流动属于层流流动；不可压缩性。液体的密度比气体大，例如水的密度是空气密度的 10^3 倍，当压力增加 1000 倍时，水的体积改变只有 4%。液体的压缩性小，可以认为是不可压流。如果微管道流动仅仅由压强梯度推动的平行流动，这是 Hagen-Poiseuille 流，其流动方程为

$$\nabla P = \mu \nabla^2 U \quad (1)$$

其中 P 是管端压降、 μ 是流动介质的动力黏性系数、 U 是流体平均速度。如果圆管直径为 d ，测量段长度为 ℓ ，由方程 (1) 可推出速度 U 及流量 Q 与压力的关系

$$U = \frac{d^2}{32\mu\ell} P, \quad Q = U \frac{\pi d^2}{4} = \frac{\pi d^4}{128\mu\ell} P \quad (2)$$

2 实验装置和测量方法

2.1 实验装置

实验台采用 10 MPa 的高压氮气瓶作为压力源 (图 1)。气瓶装有氧气调压表，其低压表能调节实验所需压力。传感器 1 精确给出气源提供的实验用压力值；储液罐内装实验用液体。为了过滤液体中的颗粒杂质和气泡，在储液罐和实验段之间设计了过滤器，其滤膜孔径为 0.2 μm；气瓶、储液罐、过滤器等部件之间用耐高压的塑料软管连接，接头采用硬密封。

微管实验段为石英圆管，内径约为 25 μm，一端与测压三通连接，另一端插入一个内径为 1~2 mm 的毛细管，其作用为测量液端面的位移。位移管 (毛细管) 的下游端不封闭，直通大气。传感器 2 则给出微管输入端的压力值。实验段及测量部分安置在有机玻璃罩内，内有温度控制装置，温度调节范围为 10°C ~ 40°C，调节精度达到 ±0.5°C。

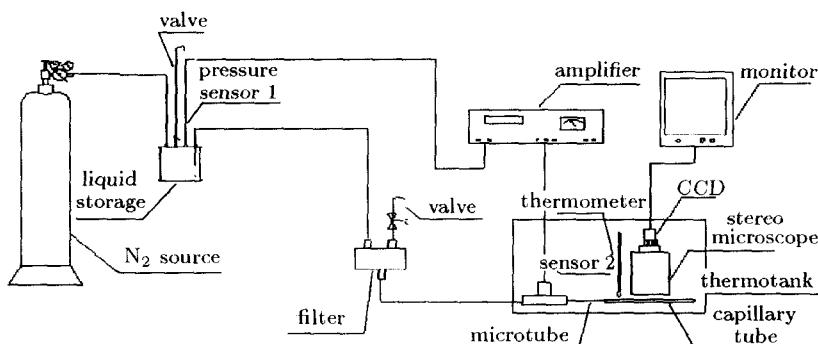


图 1 微流动实验台装置示意图

Fig.1 Micro-flow experimental set-up

2.2 测量方法

2.2.1 流量测量

位移管内液体端面的位移用体视显微镜观察。根据液端面位移的距离和所需的时间，计算位移管内的液体流量。由流动连续性定理，实验段流量与位移管流量相同，可以间接测量实验段中的液体流量。此实验方法给出的流量测量范围为： $0.01 \sim 0.1 \mu\text{L}/\text{s}$ 。

用位移法测量流量时，由微管道入口至位移管出口端（自由端）的压力降包括两部分：微管道两端压降 ΔP_d 和位移管两端压降 ΔP_D 。位移管内流动所受压力差及毛细力应与黏性力相平衡

$$\Delta P_D = P_B - P_C + P_S = \frac{4L}{D} \tau_{w2}$$

其中 P_B 是微米管的出口压力， P_C 是位移管自由端环境压力， P_S 是自由液面的毛细力。 τ_{w2} 是壁面剪切应力， L 是位移管内液柱长度， D 是位移管的内径。在实验过程中，环境压力 P_C 和毛细力 P_S 保持常数，但位移管中的液体端面在缓慢移动，造成壁面剪切力增加，因此两端的压力降 ΔP_D 是非定常的。然而，位移管液体的流动速度非常缓慢，当最大实验压力为 5 个大气压时，自由液面的推移速度只有 $40 \mu\text{m}/\text{s}$ ，可以看作静态。另一方面，对位移管液柱移动所需要的压力降 $\Delta P_D = P_B - (P_C - P_S)$ 的估算表明，相对于入口压力 P_A 而言 ΔP_D 非常小。这点可以由以下推导证明。根据圆管阻力公式计算壁面剪切应力 τ_{w2} ^[8]： $\tau_{w2} = \frac{\lambda}{8} \rho u^2$ ，其中 λ 为无量纲阻力系数，层流范围内 $\lambda = 64/Re_D$ ， Re_D 为位移管的雷诺数。如果 $U = 40 \mu\text{m}/\text{s}$, $L = 5 \text{ cm}$, $D = 1.5 \text{ mm}$ ，则 $\tau_{w2} = 2.1 \times 10^{-4} \text{ Pa}$, $\Delta P_D \approx 3 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ ，相对于入口压力 $P_A = 5 \times 10^5 \text{ Pa}$, $\Delta P_D/P_A \approx 6 \times 10^{-8}$ 。这说明位移管上的压降 ΔP_D 与实验微管两端的压降相比非常小，因此液面推移引起的非定常影响可以忽略。

2.2.2 压力测量

微管实验段入口端的压力从传感器 2 读取，精度为 5 %。在实验过程中，调整到所需压力值后，需等待压力值稳定，实验才可以进行。

2.2.3 液体黏性测量

实验用的有机液体在标准温度下的动力黏性系数可以查出，但实验温度下的动力黏性系数则利用 Pinkevitch 黏度计测量^[9]。

2.3 误差分析

2.3.1 温度和压力对液体动力黏性系数的影响

水的动力黏性系数随温度升高而降低。在20°C下，温度变化 $\Delta T = \pm 1^\circ\text{C}$ 时，黏度变化约为2.4%。实验过程中，测量温度变化 $< \pm 0.5^\circ\text{C}$ ，因此温度变化对液体黏度影响的误差 $< 2.4\%$ 。压力的变化也影响水的黏度。常压下每增加1个大气压，水的黏度增加约0.1%~0.3%。实验压力脉动量小于0.1%，引起的黏度变化小于0.0003%。其影响可以忽略。但压力测量范围的变化引起的误差应该考虑。如果压力测量范围为0~0.5 MPa，则压力变化对液体黏度影响的误差约为1.5%。因此温度和压力对液体动力黏性系数的影响误差 $< 4\%$ 。

2.3.2 位移测量的误差

位移管内液体端面的测量移动距离大于5 mm，观测分辨度可以达到0.05 mm，测量误差为1%。时间测量值大于2 min，分辨度为100 ms，测量误差为0.1%。因此，流量测量的误差主要由距离的测量引起，误差 $< 1\%$ 。

2.3.3 微管几何尺寸测量的误差

用20 kV电子显微镜测量微管内径，其分辨度小于0.1 μm ，微管内径 d 的测量误差可以达到0.5%。但是微管内径沿流向的不均匀性大于1%，约为1.33%。根据流量公式(2)，流量与微管内径 d 的 4 次方成正比，因此内径的不均匀性引起流量测量误差达到5.3%。

综上所述，微管几何尺寸的误差是最主要的误差来源，其次是温度的变化、压力测量范围的变化引起的误差。因此为了提高测量精度，除了采取恒温和恒压措施，很重要的是解决微管道内径几何尺寸的均匀性。

3 实验结果

3.1 校核装置

用去离子水作介质检验实验装置。相对误差 γ_i 定义为

$$\gamma_i = \frac{Q_{\text{exp}i} - Q_{\text{theoi}}}{Q_{\text{theoi}}} \cdot 100\% = \frac{\Delta Q_i}{Q_{\text{theoi}}} \cdot 100\% \quad (3)$$

其中 $Q_{\text{exp}i}$ 为实验测量值， Q_{theoi} 为根据公式(2)计算的理论值，最大相对误差为 γ_{\max} 。均方根误差 σ 的定义为

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\gamma_i)^2}{n-1}} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\Delta Q_i}{Q_{\text{theoi}}}\right)^2}{n-1}} \quad (4)$$

实验结果如图2所示，流量与压力符合线性关系。流量增加和流量减小过程的测量重复性很好。测量均方差 σ 为3.18%，最大相对误差 γ_{\max} 为-6.9%。

3.2 有机液体实验结果

3.2.1 流量-压力特性

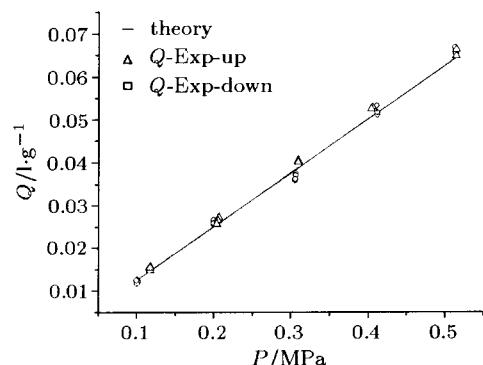


图2 去离子水的压力-流量特性

Fig.2 Pressure drop and flow rate of non-ion water

实验用有机液体是典型的非极性小分子液体。所用液体的有关参数及实验条件如下：

表 1 实验液体参数

Table 1 Specifications of test liquids

Test liquids	Molecular weights	Density g · cm ⁻³	Viscosity dynamic coff. mPa · s	Test temperature °C	Microtube length cm
non-ion water	18	1.00	1.053	18	
CCL ₄	153.8	1.63	0.99	17.5	4.774
C ₆ H ₅ C ₂ H ₅	106.2	0.88	0.685	18.5	4.634
C ₆ H ₁₂	84.2	0.81	1.027	19	4.512

三种有机液体的实验结果如图 3 所示。

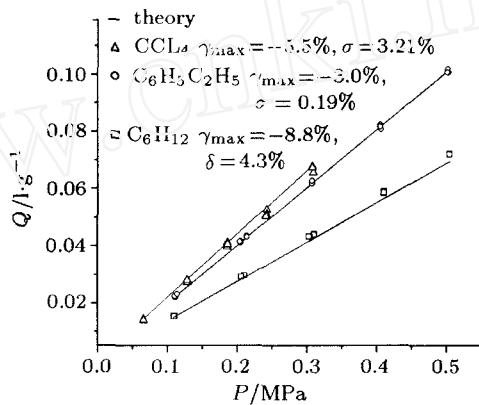


图 3 几种有机液体的压力 - 流量特性

Fig.3 Pressure drop and flow rate of organic liquids

3.2.2 有机液体分子结构尺度

如果认为有机液体分子是独立的、均匀分布在空间的，根据溶液的摩尔体积和阿佛加德罗数可以估算不同有机液体的分子可能占有的体积。设溶液分子量为 γ ，密度为 ρ ，则摩尔体积 v 为 $v = \gamma/\rho$ ，液体分子可能的结构尺度 δ 为： $\delta = \sqrt[3]{v/N}$ ，其中 N 是阿佛加德罗数。实验用的 CCL₄ 的克分子量为 154，在 17.5 °C 时密度为 1.629 g/cm³，计算出它的摩尔体积为 94.4 cm³/mol。估算出分子可能占有的空间尺度为 5.4 Å。同样估算出乙基苯分子和环己烷分子可能占有的尺度分别为 5.7 Å 和 4.3 Å。水分子的结构尺度为 2.5 Å。这几种有机液体分子尺度比水大一倍以上。实验特性曲线表明：对这些非极性、小分子有机液体，在微米管道中的流动，其流量 - 压力特性仍符合 N-S 方程。

4 结 论

本文介绍了可以进行液体流动实验的微流动实验台，其压力范围为 0~1 MPa，温度调节范围为 10 °C~40 °C。用高压气源作为压力源；采用位移法间接测量微管道的流量。测量误差主要来源于：微管道内径几何尺寸的误差、实验温度及压力范围变化引起的液体黏性系数改变。注意挑选均匀内径的微管，控制实验温度的恒定，才能提高实验测量的精度。

实验液体选用了非极性、小分子有机液体。在内径约为 $25\text{ }\mu\text{m}$ 的石英圆管内进行了流动实验。雷诺数范围 $Re < 8$ 。液体分子量范围为 $18\sim160$ ，动力黏性系数为 $0.5\sim1\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 。实验结果表明：在定常层流条件下，实验液体的压力-流量关系符合经典的 Hagen-Poiseuille 流动。对液体分子分布作理想简化后可以估算分子的可能结构尺度：水分子的结构尺度约为 3 \AA ，有机液体 CCL_4 和乙基苯的分子结构尺度大约为 5.4 \AA 和 5.7 \AA 。这说明非极性的、分子结构尺度小于纳米量级的有机液体，在微米尺度管道中的低 Re 数下的流动规律仍符合连续介质假设的经典流体力学模型。

致谢 作者在研究过程中与郑哲敏先生进行过多次学术讨论，深得教益。在本文的修改中凌国灿研究员提出了宝贵的意见。在实验台的设计加工和调试中，得到了张麟呈及刘宗源高工的大力帮助，在此一并表示衷心的感谢。

参 考 文 献

- 1 Ho Chih-Ming, Tai Yu-Chong. Micro-electro-mechanical-systems (MEMS) and fluid flows. *Annu Rev Fluid Mech*, 1998, 30: 579~612
- 2 Gad-el-Hak. The fluid mechanics of microdevices—the freeman scholar lecture. *J of Fluids Engineering*, 1999, 121: 5~33
- 3 Jiang XN, Zhou ZY, Yao J, Li Y, Ye XY. Micro-fluid flow in microchannel. In: *Transducers'95, Eurosensors IX*, Sweden, 1995-06. 1995. 317~320
- 4 Makihara M, Sasakura K, Nagayama A. Flow of liquids in micro-capillary tube consideration to application of the Navier-Stokes equations. *J of the Japan Society of Precision Engineering/Seimitsu Kogaku Kaishi*, 1993, 59(3): 399~404
- 5 Flockhart SM, Dhariwal RS. Experimental and numerical investigation into the flow characteristics of channels etched in $\langle 100 \rangle$ silicon. *ASME, J of Fluids Engineering*, 1998, 120: 291~295
- 6 Mala GM, Li Dongqing. Flow characteristics of water in microtubes. *Int J of Heat and Fluid Flow*, 1999 (20): 142~148
- 7 Pfahler J, Harley J, Bau H, Zemel J. Gas and liquid flow in small channels. *DSC*, 1991, 32: 49~59
- 8 Schlichting H. 边界层理论. 北京: 科学出版社, 1991 (Schlichting H. Boundary-layer theory. Beijing: Science Press, 1991 (in Chinese))
- 9 周兴贝. 微流道内几种液体流量特性实验的研究. 中国科学院力学研究所硕士论文, 2001, (Zhou XB. Measurement about flow rate behaviours of liquids in the microchannel. Master paper of Inst. Mech. CAS, 2001 (in Chinese))

FLOW CHARACTERISTICS OF NON-POLAR ORGANIC LIQUIDS WITH SMALL MOLECULES IN A MICROCHANNEL¹⁾

Li Zhanhua Zhou Xingbei Zhu Shannong

(LNM, Institute of Mechanics, CAS, Beijing 100080, China)

(*Laboratory of Polymer Physics & Chemistry, Institute of Chemistry, CAS, Beijing 100080, China)

Abstract The micro-scale flow's behavior has attracted great interest of the scientific researchers of the Micro-Electro-Mechanical-Systems (MEMS). As the flow characteristic length approaches to the intrinsic one of fluid medium, it is an open question that if macroscopic fluid flow rules keep valid. For gas flows, the Knudsen number linking these two characteristic lengths, has been regarded as the criteria from continuous theory to free-molecule flow: $Kn < 10^{-2}$ is for continuous flow regime and $Kn > 10$ for free-molecule flow regime. But for liquid flows, unfortunately, understanding of micro-fluid mechanics is much less than that for gases. It's still unclear whether the intrinsic characteristic length of liquid and the nondimensional number, like Kn , is suitable for liquid as. Some recent experimental results in micro-scale flows show conflict phenomena. This is not only resulted from the difficulty of the micro-scale experimental technique which needs improvement, but also from unawareness of fundamental facts in micro-flows. So it's valuable to do further in depth research. This paper presents at first the micro-flow experimental apparatus. Its pressure range was from 0 to 1 MPa with a high-pressure gas source, the experimental temperature varied in the range of 10 °C~40 °C and the flow rates were measured indirectly with displacement method. The error were analyzed, including the error resulted by the unsteady influence of the displacement of the liquid free surface. Under this experimental condition, the main error was resulted in the measuring of the microtube's diameter. Non-ion water and several organic liquids through a microchannel with diameter near 25 μm were investigated. Flow rates and pressure drop were measured. The experimental Reynolds numbers were smaller than 8, the liquid molecular weights vary from 18 to 160, their viscosity are 0.5~1 mPa·s. The flow rates varied linearly with pressure drop. It means that the flow behaviors are in agreement with the conventional theory in the Hagen-Poiseuille flow. As all the organic liquids used are non-polar molecules and their molecular scales, like CCl₄, C₆H₅C₂H₅ and C₆H₁₂, are smaller than 1 nm, the experimental results indicate that the N-S equation based on continuity medium still acts well for the low *Re* number flow in the microchannel under the present experimental conditions.

Key words microchannel, organic liquid, non-polar liquid, mems, scale effect

Received 25 April 2001, revised 04 September 2001.

1) The project supported by the National Fundamental Research Development Project of China (G1999033106) and the National Climbing A Project of China.