使用六端口微流控装置实现拉伸流中液滴的受控碰撞

Aysan Razzaghi[1] 和 Arun Ramachandran[1*]

[1]多伦多大学应用科学与工程学院，College Street 200 号，

加拿大安大略省多伦多市，邮编 M5S 3E5

* 通讯作者：arun.ramchandran@utoronto.ca

悬浮液基质中的两个分散液滴发生碰撞，是聚并的第一步。然而，要量化聚并速率，碰撞构型必须可定义，诱发碰撞的力也必须可测量。我们提出一种策略，利用六端口微流控通道中的流体动力，引导两个液滴在拉伸流中相向碰撞。通过在控制回路中实现解析解，只需一个控制参数即可确定引导液滴到达各自目标点所需的流量。该参数 χ^* 是一种无量纲时间尺度，可通过以下两种方式之一操控液滴：1）启用全部六个端口，形成具有两个驻点的流场（$\chi^* \ll 1$）；或 2）关闭部分端口，使流体通过其余活动端口，形成线性拉伸流（$\chi^* \gg 1$）。我们确定了更适合赫勒-肖液滴在六端口微流控通道中发生碰撞的特定取向。基于上述策略，我们设计并实现了控制下的正面碰撞和擦碰，使半径为 ~100 μm 的赫勒-肖全氟萘烷液滴在硅油中发生碰撞。我们采用保角映射技术，推导出考虑赫勒-肖液滴之间流体动力学相互作用所引起流动扰动的流场解析解。研究发现，凹坑模式下发生正面碰撞的两个赫勒-肖液滴之间的聚并时间与流体动力流动的应变率无关。

1. 引言

微流控已与磁场、电场、声场和光场等外力场结合，用于操控、变形、黏附和分离软颗粒及生物细胞[1–8]。遗憾的是，除了在实验中需要搭建外部场所带来的负担外，这些外部场的应用还受到粒子和材料类型的限制。例如，磁控装置只能用于磁性颗粒[5]。光力会导致发热问题，进而可能改变局部黏度[9]。此外，电力和声力会产生过大的应力，可能损伤脆弱的生物细胞[10]。这些与外部场相关的问题引出了一个问题：能否利用微流控平台上自然存在的流场——流体动力场——来操控粒子？正如近期多项研究[11–20]所示，这个问题的答案无疑是“可以”。这些研究受到四辊磨[11,21,12], 的启发，展示了对单个微米级粒子/液滴进行捕获和操控的方法。通过观察变形，研究人员测得被捕获的粒子/液滴受到流体施加的流体动力；这些变形还被用于评估界面的流变性质，例如界面张力[13,19,20,22–24]。Leal 及其同事还进行了两项液滴聚并实验[25–30]。然而，受 Schneider 等人[16], 启发的 Shenoy 等人[31] ,近期将这一方法应用于微流控领域：他们利用沿六边形微流控腔室均匀分布的六条侧通道，对两个粒子进行限制和操控[31,32]。他们采用模型预测控制（MPC）作为控制代码，以提高控制的稳定性。利用该装置，研究人员展示了从 0.1 μm 布朗颗粒到 10 μm 非胶体颗粒之间两个悬浮颗粒的流动诱导相互作用和黏附 [31,32]。我们[33] 及其他研究者[34] 已将该装置应用于液滴流动。该解析[26,33] 代码假定在无液滴时，流线速度与当前点和目标点成正比，

控制代码[34] , 以精确的方式控制液滴的运动，并观察到了导致聚并的碰撞。所研究的体系以轻质矿物油为悬浮介质，以水为液滴介质，并在油相中加入 Span 80 作为表面活性剂[33,34]。

本文为一对液滴的操控与控制提出了两个思路。首先，基于矩阵求逆来计算流量的解析代码[12], 鲜少受到关注。由于两个粒子近距离相遇时所需的流量大得不切实际，因此人们认为解析代码不适用于实验。取而代之的是 MPC 代码，它通过优化和调节通量来产生流动。然而，正如我们将在下一节展示的，解析代码只需一个参数——流经其中一个端口的流量——便可确定其余端口的流量。利用基于该流量的单一无量纲参数χ^*，我们可以将液滴送至各自的目标点：或者通过设置驻点，使其靠近液滴并涉及全部六个端口（$\chi^* \ll 1$）；或者关闭一个端口，将流动简化为五端口流（$\chi^* \gg 1$）。因此，在$\chi^* \ll 1$ 的极限下，我们可以捕获液滴；在线性拉伸流产生的正面碰撞或擦碰中，则可达到$\chi^* \gg 1$ 的极限。其概念与上文的文章[22,23] 相似，但只需按下一个按钮，操作便简单得多。这种方法的优点在于，液滴始终倾向于沿连接初始位置与目标位置的直线，以用户指定的速度移动。基于这一思路，我们概述了实现正面碰撞和擦碰的方法。其次，我们利用一种简单的理论，通过对斯托克斯流进行一阶修正，在不牺牲控制速度的前提下，精确控制软赫勒-肖颗粒。当赫勒-肖液滴在拉伸流中以一定速度移动时，其远场扰动随距离的立方衰减。因此，如果两个液滴之间仅相隔几个液滴半径，

通过反射法产生的流体动力学相互作用便会变得重要，而基于点粒子解的控制策略可能会失效[35]。具体而言，我们对尺寸相近的赫勒-肖液滴在凹陷状态下以多种毛细数进行正面碰撞，并绘制毛细数与聚并时间的关系曲线。有趣的是，在凹陷状态区间内，聚并时间与毛细数无关！在微流控两相分段流中，跨通道液滴更可能在微流控器件中生成[36]。因此，人们有兴趣获取赫勒-肖液滴的聚并数据。

本文分为以下几个部分。第 2 节介绍了新的控制算法，以及正面碰撞和擦碰的产生。第 3 节介绍实验方法和实验流程。第 4 节讨论控制算法的结果，并给出排液时间随毛细数变化的实验结果。第 5 节讨论解析方法及其他细节。第 6 节总结全文，并展望未来工作。

2. 控制算法

2.1. 算法原理

六端口微流控伸展流装置（MEFD）（图1a）由一个半径为 R 、深度为 H 的圆形主通道组成，并设有六条均匀分布的侧通道，用于使流体流入和流出，从而形成稳定流动。六端口 MEFD 内点对象的深度平均坐标下流场解析解 $\mathbf{v}^{\infty}(\mathbf{x}, \mathbf{Q}/H)$[16,31,33] 已知；该解通过求解流函数 ψ^{∞} 的拉普拉斯方程，并根据流量向量 $\mathbf{Q} = [Q_1, Q_2, \dots, Q_6]$ 在边界六段圆弧处施加适当的边界条件而确定（图1b）。假设速度场稳定，并能对变化作出即时响应

于流量的变化。点粒子只需根据该解预测的速度场 $\mathbf{v}^{\infty} = \left[\frac{\partial \psi^{\infty}}{\partial y}, -\frac{\partial \psi^{\infty}}{\partial x}\right]$ 随时间推进。例如，考虑主通道圆形区域内位置为 $\mathbf{x}_A$ 和 $\mathbf{x}_B$ 的两个点粒子 A 和 B。应调整侧通道中的流量（$\mathbf{Q}$），使粒子的瞬时速度将它们从当前位置引导至目标点（分别为 $\mathbf{x}_{A_T}$ 和 $\mathbf{x}_{B_T}$），即，

$$\mathbf{v}_P^{\infty}(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_B, \mathbf{Q}/H) = \chi_A\left(\mathbf{x}_{A_T} - \mathbf{x}_A\right), \quad 1a$$

$$\text{and } \mathbf{v}_P^{\infty}(\mathbf{x}_B, \mathbf{x}_A, \mathbf{Q}/H) = \chi_B\left(\mathbf{x}_{B_T} - \mathbf{x}_B\right), \quad 1b$$

其中，χ_A 和 χ_B （单位为 s^{-1}）是增益参数。将附录 A 中的速度 $\mathbf{v}_P^{\infty}$ 代入后，得到

$$\mathbf{A}\,[Q_1\ Q_2\ Q_3\ Q_4\ Q_5]^T = \begin{bmatrix} \chi_A\left(\mathbf{x}_{A_T} - \mathbf{x}_A\right) \\ \chi_B\left(\mathbf{x}_{B_T} - \mathbf{x}_B\right) \end{bmatrix}. \quad 2$$

这里，A 的单位为 $1/m^2$, ，是一个4×5 矩阵，与流量相乘后可得到速度。共有六个流量，但由于质量守恒要求 $\sum_{=1}^{6} Q_m = 0$ m，因此实际上只有五个未知流量。这是一个由四个方程组成的向量方程组，其关于流量向量 $\mathbf{Q}$呈线性。因此，正如 Schneider 等人[16], 、Shenoy等人[31]和 Kumar 等人[33]所指出的，还存在一个额外的自由度。我们可以利用这一点施加其他约束，但在本研究中，我们通过如下方式调整控制量：

$$\mathbf{A}'\,[Q_2\ Q_3\ Q_4\ Q_5]^T = \chi \begin{bmatrix} \mathbf{x}_{A_T} - \mathbf{x}_A \\ \mathbf{x}_{B_T} - \mathbf{x}_B \end{bmatrix} + Q_1\,\mathbf{B}', \quad 3$$

其中，A' 是一个4×4 矩阵，而B' 是一个4×1 向量。在本研究中，为便于实现，我们取 $\chi_A = \chi_B = \chi$；稍后将给出一个$\chi_A \neq \chi_B$ 的示例。将该方程写成无量纲形式，得到

$$\mathbf{A}^*\mathbf{Q}^* = \chi^* \begin{bmatrix} \mathbf{x}^*_{\boldsymbol{A_T}} - \mathbf{x}^*_A \\ \mathbf{x}^*_{\boldsymbol{B_T}} - \mathbf{x}^*_B \end{bmatrix} + \mathbf{B}^*, \qquad 4$$

其中，$\mathbf{A}^*$ 和 $\mathbf{B}^*$ 分别是 $\mathbf{A}'$ 和 $\mathbf{B}'$的无量纲形式，$\mathbf{Q}^* = [Q_2\ Q_3\ Q_4\ Q_5]^T/Q_1$、$\mathbf{x}$ 已用 R无量纲化，而 χ^*是

$$\chi^* = \frac{\chi R^2 H}{Q_1}. \qquad 5$$

χ^* 是特征时间尺度，即扫过 MEFD 圆体积所需的时间 R^2H/Q_1，相对于控制时间尺度 $1/\chi$ 的比值。χ^* 在控制过程中起着重要作用。如果 $\chi^* \ll 1$，公式 4 右侧的第一项就会变得可以忽略，且 χ^* 不会出现在流量的主导阶中。事实上，对于 $\chi^* = 0$，如公式2所示，流动矩阵的解是一个零特征值问题。该问题唯一的解是粒子的速度为零 $[\mathbf{v}_P^\infty(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_B, R_B, \mathbf{Q}/H) = \mathbf{v}_P^\infty(\mathbf{x}_B, \mathbf{x}_A, R_A, \mathbf{Q}/H) = \mathbf{0}]$，也就是说，粒子位于各自的驻点，即流速为零的位置。因此，对于 $\chi^* \ll 1$，粒子相对于其驻点仅发生微小位移。例如，我们经常会捕捉到两个粒子处于图2所示的构型中（这种初始捕获过程将在第 3.1 节稍后介绍）；两个粒子互为镜像。在模拟中，为简单起见，每个粒子的目标位置设为另一个粒子的位置（$\mathbf{x}^*_{\boldsymbol{A_T}} = \mathbf{x}^*_B$和$\mathbf{x}^*_{\boldsymbol{B_T}} = \mathbf{x}^*_A$）；两个粒子彼此追逐。$Q_1$ 端口始终显示在 180° 处。当参数 χ^*为零时，粒子位于驻点（以字母 S 标示），如图

2(a)所示。在图2(b)中，对于 $\chi^* \ll 1$，两个驻点在粒子位置附近形成，推动粒子彼此靠近。在此构型下，所有六个侧通道都参与产生图2(a)和2(b)中的流场。

当$\chi^* \gg 1$时， $\mathbf{B}^*$ 变得可以忽略，且无量纲流量$[Q_2\ Q_3\ Q_4\ Q_5]^T/Q_1$ 随χ^* 线性变化（公式4），其中一些还会随χ^*大幅增加。事实上，$[Q_2\ Q_3\ Q_4\ Q_5]^T$随χ的有量纲值线性变化；Q_1 是一个非活动端口（公式3）。因此，流量由五个端口而非六个端口控制；多出的自由度消失了。Q_1 端口的消失过程如图2所示。在$\chi^* = 0$时，1 [图2(b)], 中朝向240°粒子的驻点移至角落；在$\chi^* = 0$时，3 [图2(c)] 中该驻点与边界圆合并。在$\chi^* = 1$ [图2(d)], 中，圆上的驻点分裂为半驻点（以S'标示），如边缘处所示。此时，由于归一化端口的限制，两个侧通道中的流动Q_1 变弱；而由于对称性要求，Q_3 也变弱。在 $\chi^* \gg 1$ [图2(e)-2(f)], 中，圆形主通道内形成两个半驻点和一个完整驻点。两个侧通道Q_1 和Q_3完全停用，剩余端口产生的流场构成一个四端口流场。请注意，在极限情况下$\chi^* \gg 1$，当Q_1 未启用时，通常有五个端口，但图2(f)中由于镜像只有四个端口。

$\chi^* \gg 1$ 中的流场与两个粒子之间的线性拉伸流相似！它形成于两个粒子之间，而两者之间的连线也代表线性流场中的汇聚流动。两个半驻点将240°粒子拉向线性流场，而完整驻点则将60°粒子拉向线性流场。因此，一旦粒子处于相应位置（例如图2），只需切换至$\chi^* \gg 1$，即可产生正面碰撞。

两个粒子也可以分别以两个不同的χ^* 值前进。图3展示了一个例子，其运动方式与图2类似，但分别采用χ_A 和$\chi_B < \chi_A$（式2）。在这种情况下，粒子的行为符合表1所示。

表1. 受两种不同χ^* 值控制的粒子的行为。注意，χ_B 小于χ_A。

参数	结果
$\frac{\chi_B}{\chi_A}\chi^* \ll \chi^* \ll 1$	两个粒子都将停留在各自的驻点附近 [图3(a)]。
$\frac{\chi_B}{\chi_A}\chi^* \ll 1 \ll \chi^*$	位于240°的粒子进入半驻点区域，而位于 60° 的粒子将停留在驻点附近 [图3(b)]。
$1 \ll \frac{\chi_B}{\chi_A}\chi^* \ll \chi^*$	位于 240° 的粒子停留在半驻点区域，而位于 60° 的粒子则从其完整的驻点发生轻微位移 [图3(c)]。

$\frac{\chi_B}{\chi_A}\chi^* \ll \chi^* \ll 1$ 与图2(b)中的$\chi^* = 0.1$情况相似，因为粒子位于其驻点处。我们所关注的情况是$\frac{\chi_B}{\chi_A}\chi^* \ll 1 \ll \chi^*$，其中240°处的粒子由两个半驻点控制，而60°处的粒子位于完整驻点处。这样，60°处的粒子可以保持静止，而240°处的粒子则会靠近并发生正面碰撞。令人惊讶的是，$1 \ll \frac{\chi_B}{\chi_A}\chi^* \ll \chi^*$ 中的流动模式与$\frac{\chi_B}{\chi_A}\chi^* \ll 1 \ll \chi^*$中的流动模式更加相似。这意味着，对于$\chi_A \neq \chi_B$的情况，只要$\chi^* \gg 1$，其流动模式就会类似于图3(b)和图3(c)。从这里开始，我们将继续讨论$\chi_A = \chi_B$。

现在让我们转而研究粒子相对于Q_1端口的不同取向。我们在图2中选取了角度为60°-240°的粒子。120°-300°的取向与图2相同，只是端口不同。对于高χ^* [，0°-180°的取向很有趣]图4(a)。通常有五个活动端口，除此之外，在偏离中心的位置还有一个完整驻点，Q_1端口处还存在另一个完整驻点。在图4(b)中，我们展示了高χ^*下90°-270°的取向。在这里，只有3个活动端口，并且包括端口Q_1在内的半圆区域未被使用！在所使用的三个端口中，两个充当入口，一个充当出口。类似地，对于高χ^*，在图4所示径向位置处，相对于30°-210°或150°-330°取向，横截面内部不存在驻点。

2.2. 正碰和掠碰的实现

基于上述图示，我们现在定义正面碰撞的实现方式。如果将粒子沿60°-240°、120°-300°或0°-180°取向彼此相向放置，那么在较高的χ^* [图5(a)], 下会生成一个驻点，从而可以实现正面碰撞。为方便起见，今后将60°-240°、120°-300°或0°-180°取向称为“轴线”。例如，我们在视频（视频V1）中展示了60°-240°取向下正面碰撞的路径。称为“共轴”构型的30°-210°、90°-270°或150°-330°构型，在粒子相距较远时不会在装置中心附近形成驻点 [图4(b)], ，但当粒子足够接近时会形成驻点（视频V2）。然而，沿轴线的流动是对称的，而沿共轴的流动则是非对称的。此外，沿轴线的流动始终在粒子中间具有驻点，而沿共轴的流动则在角落处具有驻点，位于

模拟开始时的位置，并且直到模拟结束时才向中心移动。对于沿共轴方向的赫勒-肖液滴碰撞，当两个液滴在流场完全演化之前发生接触时，非对称流动可能导致液滴界面处流体动力分布不均，从而可能在聚并时间内引起薄膜的非对称变形。这些原因促使我们采用轴向构型，而不是共轴构型。对于掠碰，与正面构型中使粒子彼此对准不同，我们将原点和目标位置设置在偏离轴线的位置，并结合掠碰角φ进行调整，如图5(b)所示，使掠碰沿轴线发生。例如，我们在视频（视频V3）中展示了60°-240°取向下掠碰的路径。在正面碰撞和掠碰中，我们利用实验过程中记录的流量，将应变率（G）确定为矩阵$\begin{bmatrix} \frac{\partial v_x}{\partial x} & \frac{\partial v_x}{\partial y} \\ \frac{\partial v_y}{\partial x} & \frac{\partial v_y}{\partial y} \end{bmatrix}$的正特征值。

2.3. 尺度 $\boldsymbol{\tau^* = \chi t_{loop}}$

还有第二个无量纲群支配这一过程：$\tau^* = \chi t_{loop}$。时间 t_{loop} 是硬件和软件执行所需的总时间。为了实现有效控制，t_{loop} 应短于增益参数 $1/\chi$ 的倒数，即 $\tau^* = \chi t_{loop} < 1$。这对参数 χ 施加了上限。在实验中，t_{loop} 为 80 ms，因此 $\frac{1}{\chi} >$ 80 ms。此外，在粒子操控和碰撞运行中，$\chi^* = \chi R^2 H/Q_1$ 的值可达到约 100。因此，特征时间尺度 $R^2 H/Q_1$ 的量级被限制为 10 s。基于 $R = 1$

mm 和 $H = 100\ \mu m$，我们得到的最大流量 Q_1 的量级为 1 mm^3/min。 正如我们将在第3节中展示的，我们大致达到了这一指标，流量为 $Q_1 = 0.92\ mm^3/min$。

2.4. 赫勒-肖液滴的修正

当评估点靠近赫勒-肖颗粒的位置时，该颗粒的存在会显著改变基于点解的流场。因此，我们求得了存在半径为R_P 、位于位置$\mathbf{x}_P$的圆形插入件时流场的解析解$\mathbf{v}_P^\infty(\mathbf{x}, \mathbf{x}_P, R_P, \mathbf{Q}/H)$，如图6(a)所示。具体做法是利用保角映射技术，求解 ψ_P^∞ 的拉普拉斯方程，但在求解域中加入一个圆（见补充信息 SI. A）。颗粒速度随后为$\mathbf{v}_P^\infty = \left[\frac{\partial \psi_P^\infty}{\partial y}, -\frac{\partial \psi_P^\infty}{\partial x}\right]$。为确定圆形粒子对流场的一阶效应，在图6(b-c)中，设置两个粒子从其初始位置$(\mathbf{x}_{AI}, \mathbf{x}_{BI})$向各自目标位置$(\mathbf{x}_{AT}, \mathbf{x}_{BT})$移动。在图6(b)中，由于另一个粒子的存在，粒子会受到$\mathbf{v}_P^\infty$ ，但根据ψ^∞更新的流量会使其继续前进。 如图6(b)所示，初始颗粒间距δ/R为0.26。χ^* 的值远大于1。对于受到$\mathbf{v}_P^\infty$ 的粒子，使用 ψ^∞ 估算流量会导致粒子偏离并在近距离接触时发生重叠（重叠量为半径的11.2%）。在使用ψ_P^∞ 更新所需流量[后，图6(c)], 中受到流动扰动的粒子能够彼此通过，其中心点不会发生偏离。请注意，当$R_P \ll R$时，$\mathbf{v}_P^\infty(\mathbf{x}, \mathbf{x}_P, R_P, \mathbf{Q}/H)$趋于$\mathbf{v}^\infty(\mathbf{x}, \mathbf{Q}/H)$，因此该解析解对点粒子同样适用。

3. 实验装置与实验步骤

为展示控制的实现方式，我们通过操控两个赫勒-肖全氟萘烷液滴（Sigma Aldrich，黏度为5 cP）在500 cP硅油（Sigma Aldrich）中进行实验。硅油通过刚性聚醚醚酮管（内径0.02英寸）泵入六端口MEFD。 如图7所示，所有六个流体储液器均连接至压力控制器（Elveflow OB1, MK3），其升压/降压响应时间为20 ms。分散相液体储液器也连接至压力控制器（Marsh Bellofram）。全氟萘烷液滴通过T形接头采用阶梯乳化[37,38] 生成，并应用“按需液滴”原理[39]。在整个控制过程中，必须使T形接头处的全氟萘烷-硅油界面保持静止，以防止控制过程中产生新液滴；这是通过在T形接头处实现静压平衡[39]来完成的。微流控通道刻蚀在硅晶圆上，并与硼硅酸盐玻璃进行阳极键合。为准确控制煎饼状软颗粒/液滴，必须防止全氟萘烷液滴润湿玻璃和硅通道壁。为此，我们采用气体模板法[41]，在微流控器件上涂覆[40] 5%（w/w）的聚甲基戊烯己烷溶液（Sigma Aldrich）。

根据第2.4节提出的修正方法，在通道 中控制赫勒-肖液滴。为了控制液滴，每个控制回路都从相机（Teledyne Lumenera infinity3S-1URM）以 60 fps 采集 MEFD 圆形图像开始。采集到的图像被发送至计算机进行图像处理，并使用 MATLAB® 计算所需的流量（图像处理详情以及控制回路示意图见补充信息B）。流量

根据 $P_m - P_0 = \mathrm{R}_m Q_m$ 将流量换算为压力，其中 P_m 为各流体储液池中的压力，P_0 为主圆形通道中心处的压力，R_m 为每条侧通道及其相连 PEEK 管的流体动力阻力。根据装置中流体流动的不可压缩性，可推导出压力P_0 为 $P_0 = \left(\frac{P_m}{\mathrm{R}m}\right)\Big/\sum_{m=1}^{6}\left(\frac{1}{\mathrm{R}m}\right)$。当六条侧通道的流体动力阻力相等时，$P_0$ 可简化为 $P_0 = \frac{1}{6}\sum_{m=1}^{6} P_m$。在典型的碰撞实验中，$P_m$ 的最大值为 5 磅每平方英寸，P_0 约为 3.4 磅每平方英寸，阻力 $\mathrm{R}_m = 7\times 10^{14}$ Pa.s m³对应的最大流量为 0.92 mm^3/min。

为进行碰撞实验，在通道中发现两个或更多液滴后，需要将其中两个液滴置于轴向构型（60°-240°、120°-300°或0°-180°），以便引发正面碰撞或擦碰，同时将其余液滴冲走。为此，将目标位置沿轴线设置，并在低χ^* 或高χ^*下进行控制。即使采用高 χ^*，随着粒子接近各自的目标位置，如公式4所示，$\chi^*(\mathbf{x}^*_{A_T} - \mathbf{x}^*_A)$和$\chi^*(\mathbf{x}^*_{B_T} - \mathbf{x}^*_B)$最终也会变小，粒子最终停留在各自的驻点。将所有六个侧通道（以及连接分散相储液池的侧通道）的压力设为零，使流动停止并将液滴困住。随后，执行图5(a)所示的正碰控制代码，或图5(b)所示的掠碰控制代码。

4. 结果与讨论

4.1. 控制的演示

为展示对赫勒-肖液滴的精准操控，首先，在深度为100 μm的装置中，将两个半径分别为100和125 μm的液滴以彼此相隔500 μm的距离保持在不同但固定的初始位置，并持续100秒，构型如图 8(a)插图所示。图 8(a)还展示了χ^* 变化对控制精度的影响。两个液滴的位置（d）均随χ^*变化而同相波动。随着液滴接近目标，由χ^* 决定的指定速度（$\mathbf{v}_P^{\infty}$）因间距减小而降低。结果表明，液滴接近目标时增大χ^*，能够提高精度并减小偏差。图 8(a)中t = 95 s时的情况可见这一点：将χ^* 从50增至100，会使d显著减小。在图 8(b)中，图 8(a)所示的一组液滴沿边长为500×500 μm的正方形（总长2 mm）的边移动（见视频V4）。如图 8(b)所示，液滴沿连接其中心与目标点的直线方向移动。图 8(c-e)展示了图8(b)所示操控过程中液滴中心的位置。液滴虽单调移动，但其中心相对于连接中心与目标点的直线会有一定偏离。然而，如补充信息 C所示，这些偏离相对于液滴尺寸而言很小，且没有任何超调；这是本研究采用矩阵求逆控制算法的直接结果[32]。液滴用60秒完成整个轨迹，行进距离比液滴尺寸大一个数量级。我们实验中赫勒-肖液滴的平均速度为30 μm/s。

4.2. 正面碰撞与掠碰演示

图 9(a) 和 9(b) 分别展示了使用第 2.3 节和图 5 中介绍的控制策略进行的赫勒-肖液滴正面碰撞和掠碰（见补充视频 V5 和视频 V6）。在碰撞实验中，χ^* 的值设为 100，因此液滴相向运动时，它们之间会形成一个驻点（第 2.2 节）。由于在赫勒-肖液滴的修正中，应变率 G 是位置的函数，因此每个液滴中心处的应变率略有不同。因此，在分析碰撞实验时，采用了G 的平均值。在正面碰撞中，[图 9(a)], 液滴一旦接触，恒定的流体动力便会使液滴持续相互挤压，直至液滴在排液时间 (t) 内聚并。由于对两个粒子都进行了控制，液滴无法分离。我们选择 t = 0 ，对应于两个赫勒-肖液滴之间的距离为$R_{p_1} + R_{p_2}$两个液滴半径之和的时刻。另一方面，在掠碰中，[图 9(b)], 两个液滴发生碰撞并旋转，直到流体动力改变方向，随后液滴分离[29]。

4.3. 液滴正面碰撞中的排液时间测量

我们测量了两个在拉伸流中通过正面碰撞接触的赫勒-肖液滴的流体动力排液时间。图 9(c) 显示了无量纲排液时间（tG）随 Ca 数（$Ca = \frac{4\mu G R_p^3}{\gamma H^2}$）的变化，其中 G 为流动的应变率，μ 为悬浮流体的黏度，γ 为所测得的全氟萘烷-硅油界面的界面张力（IFT）；我们使用自制四端口 MEFD 测得其为 1.4mN m。γ 测量的计算细节见补充信息 C。排液时间从 t = 0 开始测量，直到两个液滴合并的瞬间。据我们所知，这是

首次在可动界面上，并在两个液滴的赫勒-肖运动极限下，通过实验测量流体动力排液时间。图 9(c) 中 tG -Ca 曲线的线性表明，在正面碰撞中，排液时间与应变率无关！理论支持了这一结果（推导见补充信息 D）：

$$t\sim \frac{\lambda\mu R_P}{\gamma}\frac{\sqrt{H}}{\sqrt{h_f}}. \qquad 4$$

这里，λ 是分散相与悬浮相的黏度比，h_f 是液膜最终高度。原因如下。连续性要求体积减少速率等于排液速度乘以横截面坐标。理论上已知，对于非受限液滴，体积减少速率与液膜半径的平方成正比，而速度项则与液膜半径成正比，因此排液速率与液膜半径成反比[29,42]。然而，对于赫勒-肖液滴，液膜半径在线性连续性方程两侧均出现，其对应变率的影响会相互抵消[43]。

5. 讨论

这里有必要对六端口装置中的碰撞解析方法作几点说明。流量矩阵（**Q**）以第一端口处的正流量（Q_1）进行无量纲化。无量纲化可以基于任意一个端口的流动进行，并可将所选端口的流量指定为正值或负值。因此，对于 χ^* 的单一取值，拓扑结构有 12 种不同的解。但就轴与共轴而言，正碰和擦碰看起来相同，如图2和图4所示。

为了使粒子从一个位置移动到另一个位置，应避免颗粒相遇，因为这会导致较高的耗散率[16,31,32]。这可以通过 MPC 实现，方法是使用 β，即流率正则化项[31,32]。在本研究中，为了通过初始操控使粒子到达轴线，我们不使用 MPC，而是在低 χ^* 或 高 χ^*下使用我们的解析算法，如第3节所述。如果压力降显示流量异常大，而且我们不必考虑应变率（本例中确实如此），则可以始终将流量除以某个因子，以控制流量。但将粒子设置在轴线上之后，我们的目标是形成一次相遇或碰撞，因此不能采用最小耗散的思路。此外，使用解析方法，在极限 $\chi^* \gg 1$ 下，沿轴线发生正碰或擦碰时，通道内部会产生一个驻点。这些情况由五个端口而非六个端口的流动产生，且流量为 $\chi^* \gg 1$：额外的自由度消失了（第2节）。如果要以受控应变率进行碰撞（应变率由流量调节），那么根据解析解，沿轴线的流量只有一种选择，而非多种。

鉴于“控制 N 个粒子需要 2N+1 个端口”这一观点，我们特别关注 N端口装置中产生的半驻点。在我们的四端口装置中也会出现这种情况：可以有一个驻点，也可以有两个半驻点。在五端口装置中，装置内可能存在一个驻点和一个半驻点，或三个半驻点。在六端口装置中，可能存在两个驻点、一个驻点和 2 个半驻点，或 4 个半驻点。三端口装置中也可以有一个半驻点，并捕获一个粒子[16]！我们的初步研究还表明，正如 Shenoy等人[32]所指出的，在五端口装置中也可能进行碰撞。这将留待未来研究。

本研究使用了 Hele-Shaw 微流控通道。在 Hele-Shaw 通道中，宽度大于深度。因此，涡量可以忽略不计，几乎无法实现旋转流；只能采用拉伸流。例如，在四端口 MEFD 中，需要使粒子拉伸对齐；没有旋转作用来辅助运动。因此，使用四端口装置可以实现短时正面碰撞。在最初的计算机控制的四辊轧机[26], 中，两个液滴在拉伸流中发生正面碰撞，但由于四辊磨中可以产生旋转，液滴可以无限期地保持这种构型。然而，在微流控 Hele-Shaw 四辊磨中，由于没有旋转作用的辅助，我们无法让两个液滴长时间正碰。不过，使用六端口 MEFD 时，两个液滴由各自独立的目标点（图 5）控制，因此，只要压力储液器中还有液体，就可以让两个液滴发生正面碰撞。我们的实验中，总循环时间约为 80 ms，时间分配如下：

（1）通过相机采集图像（~17 毫秒）

（2）进行图像处理（~45 毫秒），

（3）计　算通过解析解得到的流量和压力（~13 毫秒），并　　d

（4）与压力控制器通信（~5 毫秒）。

根据参考文献 31，与 MPC 对应的总循环时间为 33 ms。显然，这比我们的 80 ms 时间尺度短，但请注意，该分析是使用 Labview®（一种先进的数据分析与控制软件）完成的。我们使用解释型语言 MATLAB® 进行了计算和分析，速度要慢得多。如果使用 Labview®，我们的计算速度会快得多。

6. 结论

在本稿件中，我们通过采用矩阵求逆法确定六端口 MEFD 中所需的流量，展示了如何操控一对粒子沿期望轨迹运动。以往的实践中，人们不建议使用矩阵求逆法确定流量，因为对于涉及粒子相遇的轨迹，该方法会导致较高的耗散率。然而，本稿件表明，只需使用单个控制参数 χ^*，矩阵求逆法便能有效地引导粒子到达各自目标位置。χ^* 是相对于控制时间尺度扫描 MEFD 圆体积所需的特征时间尺度。将 χ^* 从零增至其最大值（该最大值由循环时间确定），会使流场拓扑从双驻点流（$\chi^* \ll 1$）转变为线性拉伸流（$\chi^* \gg 1$）。我们利用该系统设计并实现了一对赫勒-肖液滴之间有系统的正面碰撞和擦碰。为考虑赫勒-肖液滴之间的流体动力学相互作用，我们采用保角映射技术，通过在六端口装置中消除一个圆形液滴来计算修正项。

对于发生正面碰撞的受限液滴，液膜中的排液时间对应变率不敏感；而对于非受限液滴，排液速率则呈现出应变率的 $1/3$[29,42] 次幂关系。这一现象可用连续性方程来解释。与凹陷液膜对应的液膜半径是影响毛细数的主要因素，而连续性要求液膜半径被抵消，因此得出这一结果。

这项工作有若干启示，这里列举其中两点。要研究两个 Hele-Shaw 液滴的聚并，还需要进行更长时间的研究。尚有多个变量需要探究（黏度比、液滴半径、通道深度和宽度等），未来将对这些变量进行研究，以量化正面碰撞和擦碰中的排液时间。还可以采用本文介绍的方法，研究第三种悬浮相中两种不同相的液滴聚并，从而形成复合液滴[44]（从核壳结构到 Janus 结构）。

致谢

我们感谢 Syncrude Canada Ltd 和加拿大自然科学与工程研究委员会（NSERC）协作与研究发展基金 CRDPJ 514675-17 提供的资助。A. Ramachandran 感谢加拿大研究讲席（档案编号 # 950-231567）。

参考文献

1. Zhang, S. 等. 光电微型机器人：用于微操作的多功能工具箱. Proc Natl Acad Sci USA 116, 14823–14828 (2019). 2. Bolognesi, G. 等. 利用光镊塑造并融合仿生囊泡网络. Nat Commun 9, 1882 (2018). 3. Grier, D. G. 光学操控领域的一场革命 . Nature 424, 810–816 (2003). 4. Gosse, C. & Croquette, V. 磁镊：分子尺度上的微操作与力测量. Biophysical Journal 82, 3314–3329 (2002). 5. Sarkar, R. & Rybenkov, V. V. 磁镊及其应用指南. Front. Phys. 4, (2016).

6. Ozcelik, A. 等. 面向生命科学的声学镊子. Nat Methods 15, 1021–1028 (2018). 7. Cohen, A. E. & Moerner, W. E. 在溶液中捕获和操控纳米尺度物体的方法. Appl. Phys. Lett. 86, 093109 (2005). 8. Probst, R. & Shapiro, B. 三维电动镊取：器件设计、建模与控制算法. J. Micromech. Microeng. 21, 027004 (2011). 9. Atajanov, A., Zhbanov, A. & Yang, S. 生物细胞的分选与操控，以及光力的应用前景. Micro and Nano Syst Lett 6, 2 (2018). 10. Poliachik, S. L., Chandler, W. L., Mourad, P. D., Ollos, R. J. & Crum, L. A. 暴露于高强度聚焦超声下的血小板激活、聚集与黏附. Ultrasound in Medicine and Biology 27, 10 (2001). 11. 可定义流场中乳液的形成. 26. 12. Bentley, B. J. & Leal, L. G. 用于研究二维线性剪切流中粒子和液滴动力学的计算机控制四辊磨. J. Fluid Mech. 167, 219 (1986). 13. Hudson, S. D. 等. 四辊磨的微流控模拟装置. Appl. Phys. Lett. 85, 335–337 (2004). 14. Lee, J. S., Dylla-Spears, R., Teclemariam, N. P. & Muller, S. J. 适用于所有流动类型的微流控四辊磨. Appl. Phys. Lett. 90, 074103 (2007). 15. Tanyeri, M., Johnson-Chavarria, E. M. & Schroeder, C. M. 用于单个颗粒和细胞的流体动力学捕获器. Appl. Phys. Lett. 96, 224101 (2010). 16. Schneider, T. M., Mandre, S. & Brenner, M. P. 微流控装配线算法. Phys. Rev. Lett. 106, 094503 (2011).

17. Tanyeri, M., Ranka, M., Sittipolkul, N. & Schroeder, C. M. 一种基于微流控的

流体动力学捕获器：设计与实现。Lab Chip 11, 1786 (2011)。

18. Tanyeri, M. & Schroeder, C. M. 利用流体流动操控和约束单个颗粒。Nano Lett. 13, 2357–2364 (2013)。

19. Motagamwala, A. H. 一种用于操控软颗粒的微流控拉伸流装置

颗粒。75。

20. Narayan, S., Moravec, D. B., Dallas, A. J. & Dutcher, C. S. 一滴液滴在

四通道微流控流体动力学捕获器。《物理评论：流体》5，113603（2020）。

21. Cox, R. G. 一般时变流体流动中液滴的变形。《流体力学杂志》37，601–623（1969）。

22. Haward, S. J., Oliveira, M. S. N., Alves, M. A. & McKinley, G. H. 用于微流控拉伸流变测量的优化十字狭缝流动几何结构。《物理评论快报》109，128301（2012）。

23. Del Giudice, F., Haward, S. J. & Shen, A. Q. 稀聚合物溶液的弛豫时间：一种微流控方法。《流变学杂志》61，327–337（2017）。

24. Metcalf, A. R., Narayan, S. & Dutcher, C. S. 大气气溶胶科学中微流控概念及其应用综述。《气溶胶科学与技术》52，310–329（2018）。

25. Hu, Y. T., Pine, D. J. & Leal, L. G. 加入增容剂后的液滴变形、破裂与聚并。流体物理 12, 484–489 (2000)。

26. Yang, H., Park, C. C., Hu, Y. T. & Leal, L. G. 二维线性流动中两个等尺寸液滴的聚并。流体物理 13, 1087–1106 (2001)。

27. Park, C. C., Baldessari, F. & Leal, L. G. 分子量对聚并影响的研究：界面滑移层。流变学杂志 47, 911–942 (2003)。

28. Ha, J. W., Yoon, Y. & Leal, L. G. 增容剂对流动中两个液滴聚并的影响。流体物理 15, 849–867 (2003)。

29. Leal, L. G. 黏性流体中流动诱导的液滴聚并。流体物理 16,

1833–1851 (2004)。

30. Hsu, A. S., Roy, A. & Leal, L. G. 液滴尺寸对两个等尺寸液滴聚并的影响

在正面碰撞中。流变学杂志 52, 1291–1310 (2008)。

31. Shenoy, A., Rao, C. V. & Schroeder, C. M. 用于通过流体技术实现多路粒子操控和组装的斯托克斯捕获器。美国国家科学院院刊 113, 3976–3981 (2016)。

32. Shenoy, A., Kumar, D., Hilgenfeldt, S. & Schroeder, C. M. 使用斯托克斯捕获器进行多路粒子操控时的流动拓扑结构。Phys. Rev. Applied 12, 054010 (2019).

33. Kumar, D. 用于在两个软颗粒之间产生受控碰撞的微流控器件。95.

34. Narayan, S. 等。利用微流控流体动力学捕获器深入了解表面活性剂稳定液滴的微尺度聚并行为。《朗缪尔》36, 9827–9842 (2020).

35. Leal, L. G. 《高级传递现象》。934 (2007).

36. Dendukuri, D., Gu, S. S., Pregibon, D. C., Hatton, T. A. & Doyle, P. S. 微流控器件中的停流光刻。Lab Chip 7, 818 (2007).

37. Eggersdorfer, M. L., Seybold, H., Ofner, A., Weitz, D. A. & Studart, A. R. 阶梯乳化中润湿对液滴形成的控制。《美国国家科学院院刊》115, 9479–9484 (2018).

38. Dangla, R., Fradet, E., Lopez, Y. & Baroud, C. N. 阶梯乳化的物理机制。《物理学杂志D：应用物理》46, 114003 (2013).

39. Teo, A. J. T. 等. 微流控聚焦流装置中负压诱导液滴生成。《分析化学》89, 4387–4391 (2017)。

40. Fiddes, L. K. 等. 一种用于模拟

心血管流动条件的圆形横截面聚二甲基硅氧烷微流控系统。《生物材料》31, 3459–3464 (2010)。

41. Daniel, D., Timonen, J. V. I., Li, R., Velling, S. J. & Aizenberg, J. 润滑表面上的油膜滑行液滴,

《自然·物理》13, 1020–1025 (2017)。

42. Ramachandran, A. & Leal, L. G. 界面滑移对正面碰撞的两个等尺寸无表面活性剂液滴的薄膜排液时间的影响：标度分析。17。

43. Goel, S., Ng, S., Acosta, E. & Ramachandran, A. 接触时间和接触压力对悬浮于浓缩沥青溶液中的水滴聚并的作用。《燃料》223, 486–495 (2018).

44. Blanken, N., Saleem, M. S., Thoraval, M.-J. & Antonini, C. 复合液滴撞击：综述。《胶体与界面科学前沿》51, 101389 (2021).

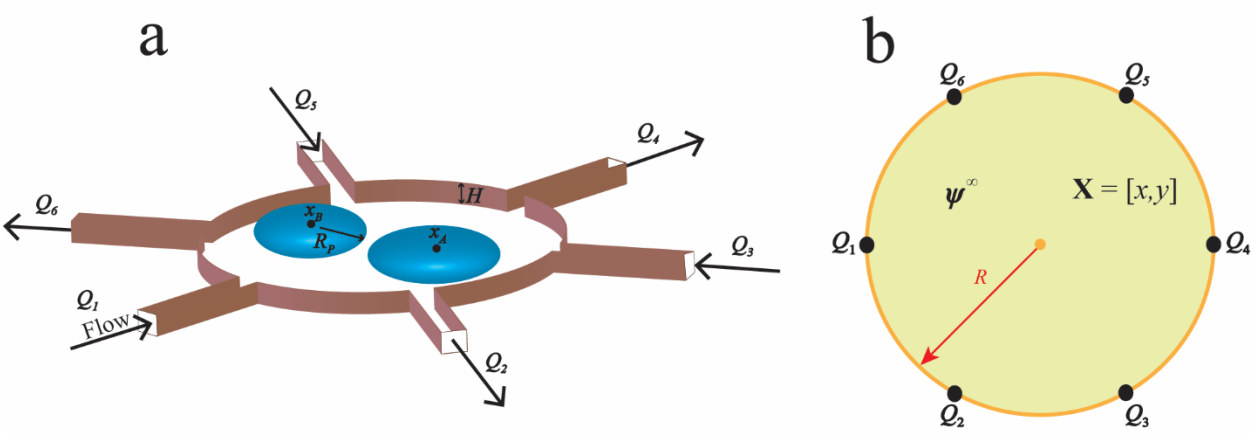

图1。（a）六端口 MEFD 示意图，其中有两个跨通道软颗粒。粒子的半径 R_p 大于通道深度 H，因此颗粒呈薄饼状。流体经侧通道流动，在圆形主通道内形成流场。（b）六端口 MEFD 圆的几何结构，以及为点对象建立的流场（ψ^∞）。

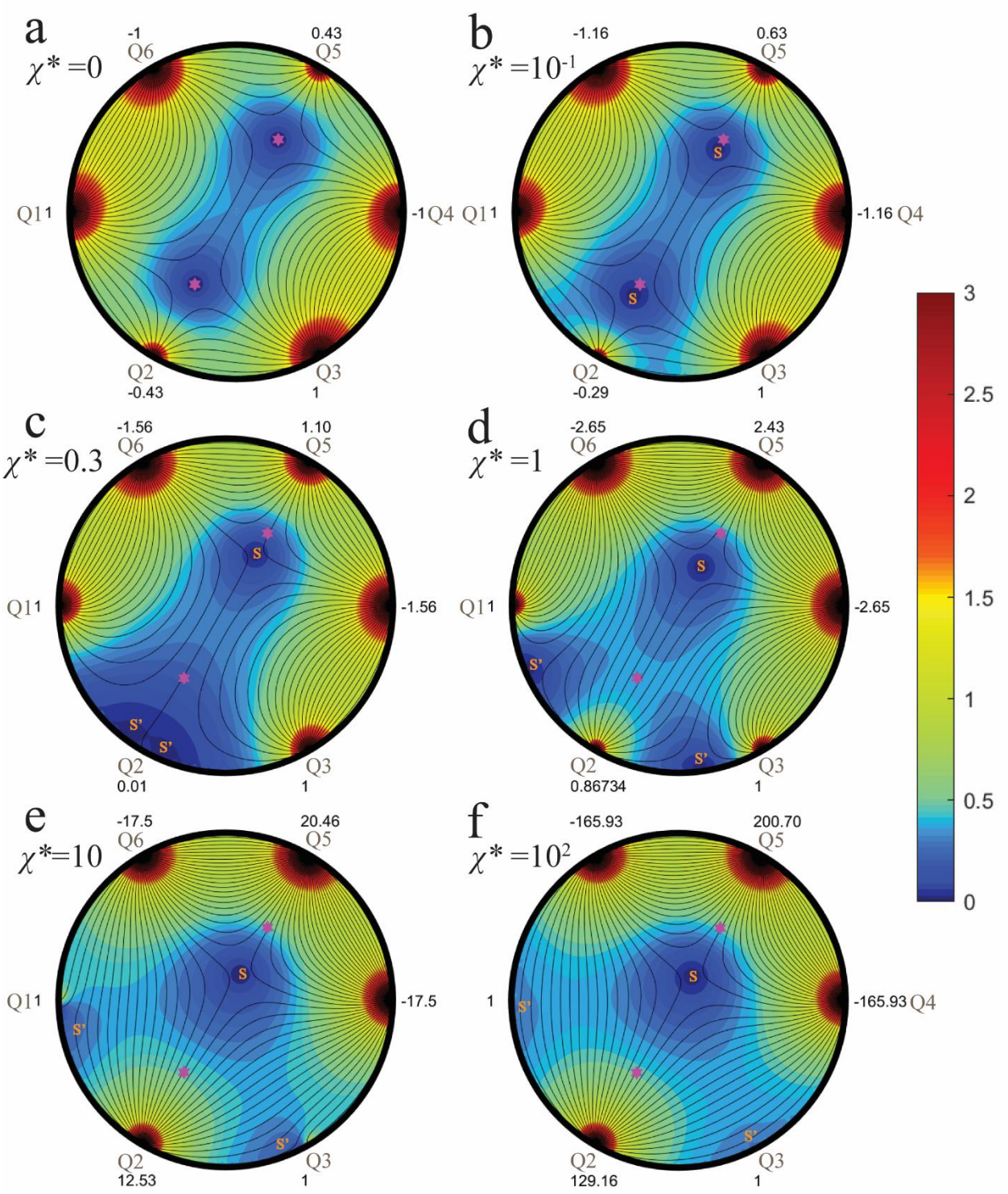

图2。60°-240°取向下两颗粒的速度等值线和流线（以品红色六芒星表示），两颗粒设置为以速度 a) χ^*=0、b) $\chi^*=10^{-1}$、c) χ^*=0.3、d)χ^*=1、e) χ^*=10 和 f)$\chi^* = 10^2$ 相向运动。驻点以 S 表示，c-f 中的半驻点以 S’ 表示。

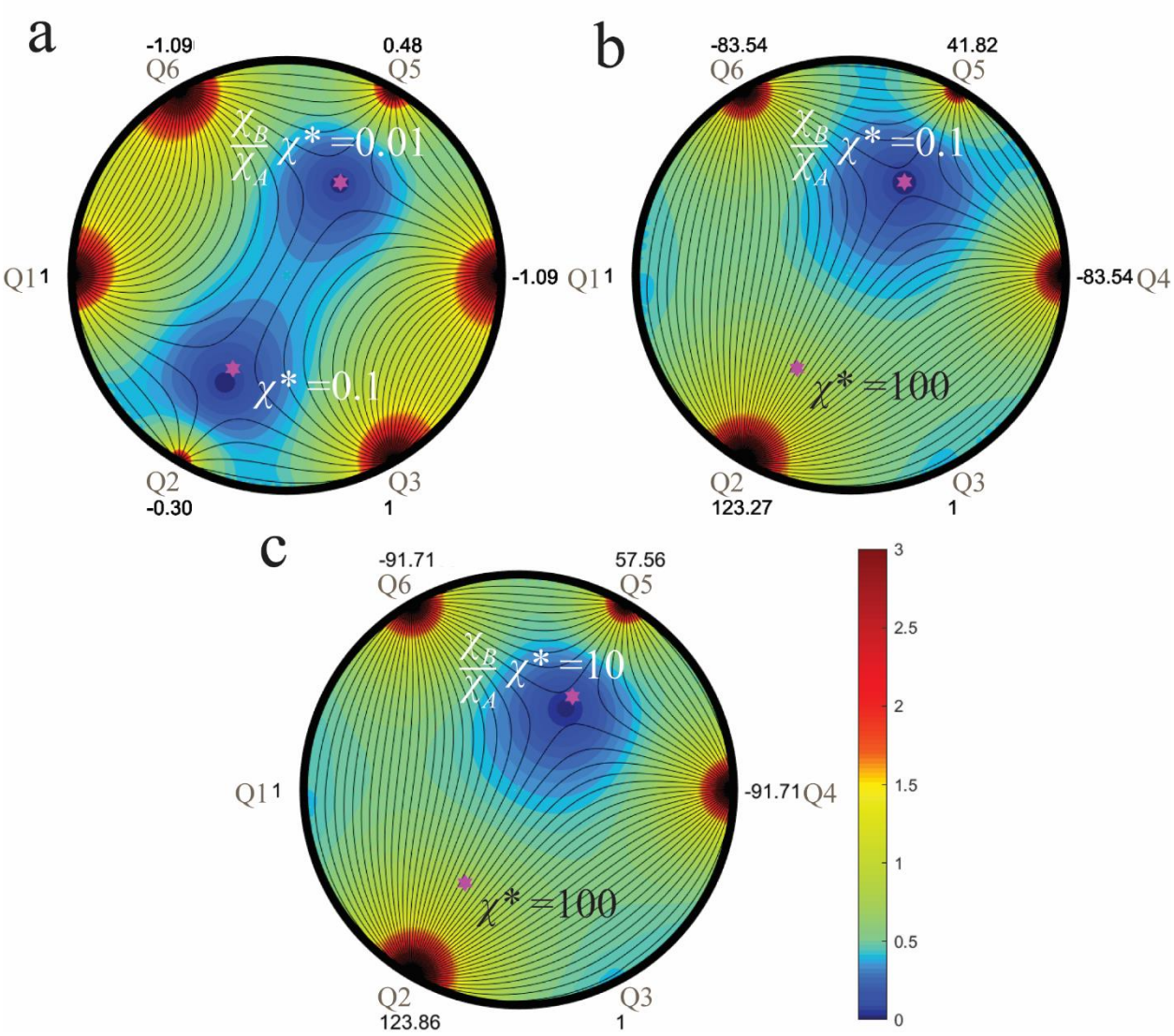

图3. 60°-240°取向的两个颗粒（以品红色六芒星表示）以不同的χ^*值相向运动时的速度等值线和流线。假设$\frac{\chi_B}{\chi_A}<1$，在a) $\chi_A^*=0.1$和$\chi_B^*=0.01$、b) $\chi_A^*=100$ 和$\chi_B^*=0.1$，以及c) $\chi_A^*=100$ 和$\chi_B^*=10$时。

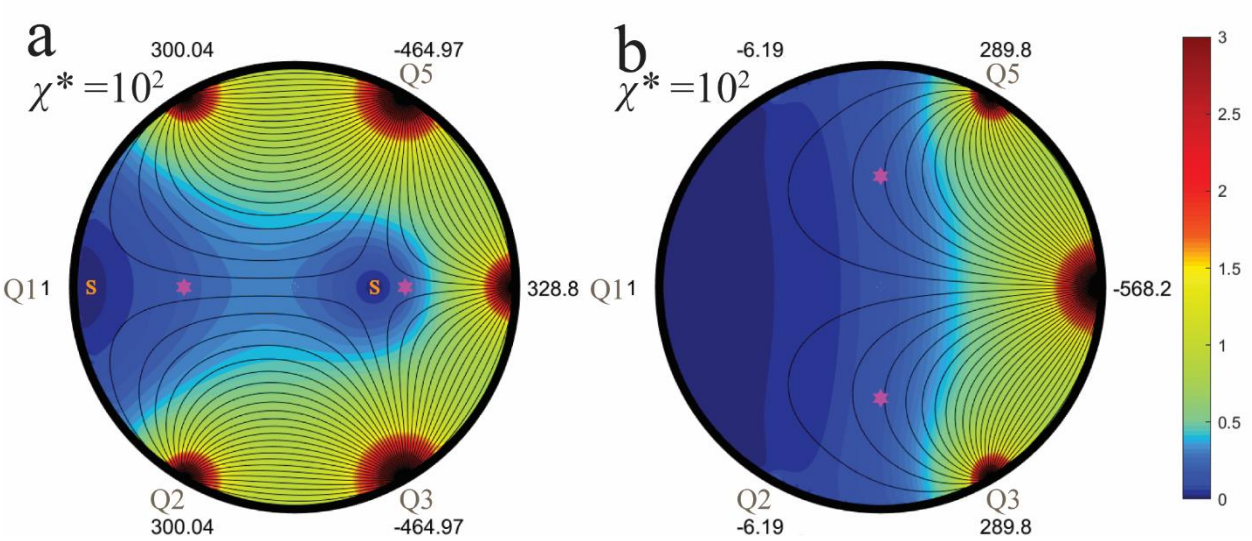

图4. 两个粒子（以品红色六芒星表示）在以下条件下相向运动时的速度等值线和流线：$\chi^* = 10^2$ a) 处于 0°-180° 方向；b) 处于 90°-270° 方向。驻点以 S 表示。

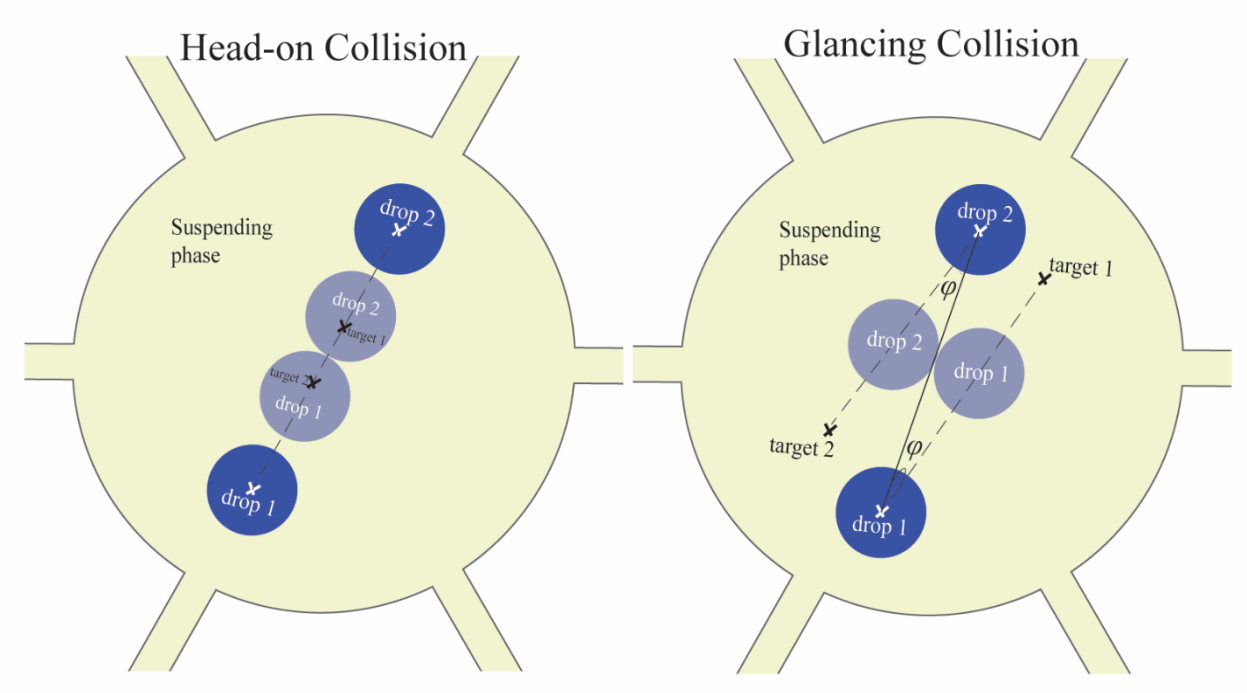

图 5. 在六端口 MEFD 中诱导正面碰撞和擦碰的策略示意图。对于正面碰撞，目标点位于液滴的中心线上。对于擦碰，目标点位于与中心线成 φ 角的位置。

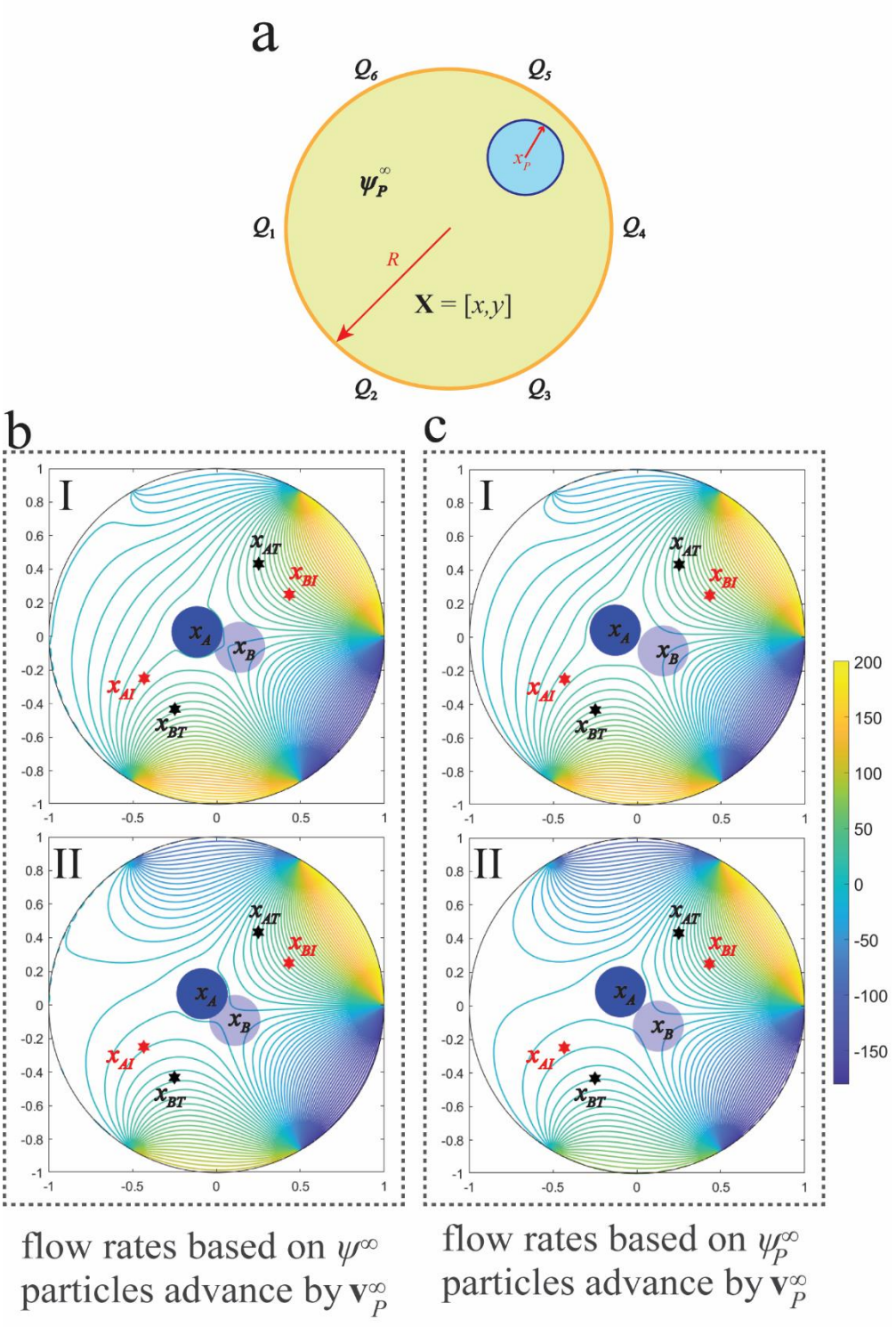

图 6. (a) 六端口 MEFD 圆的几何结构，以及根据圆形插入件位于任意位置 x_P 的情况建立的流场（ψ_p^{∞}）。(b) 粒子从初始位置（x_{AI}, x_{BI}）移动到目标位置（x_{AT}, x_{BT}）时的流场演变；粒子每次前进 $\mathbf{v}_P^{\infty}$，流量随之更新

基于ψ^{∞}。（c）颗粒操控过程中，粒子从初始位置（x_{AI}， x_{BI}）移动至目标位置（x_{AT}， x_{BT}）时的流场演化；粒子由$\mathbf{v}_P^{\infty}$ 推进，流量根据ψ_p^{∞}进行更新。

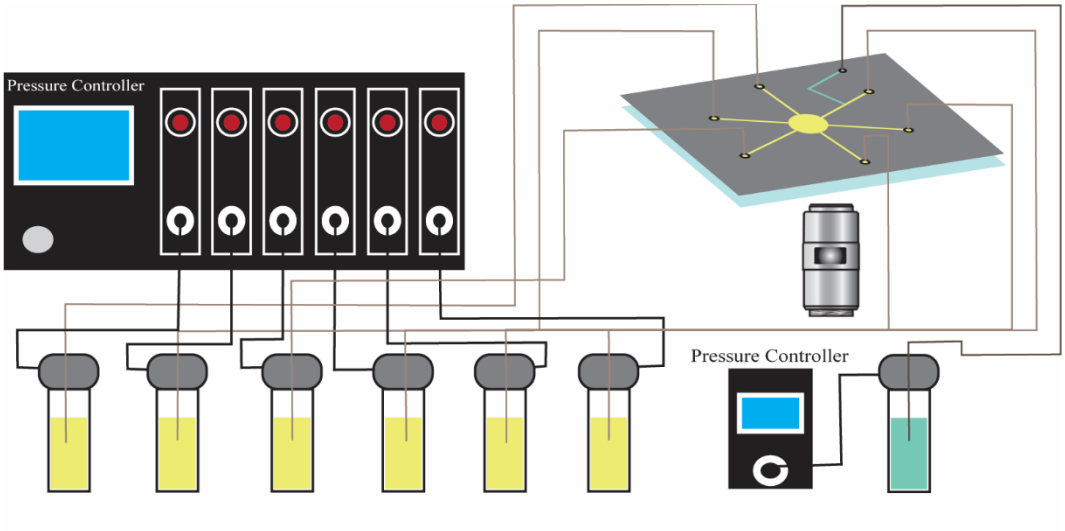

图7。实验装置中，六个储液器分别向MEFD的六个端口之一输送流体，并与使用MATLAB®进行控制的压力控制器相连。黄色表示悬浮/连续液体介质，蓝色表示分散相，该分散相流向T形接头以生成液滴。

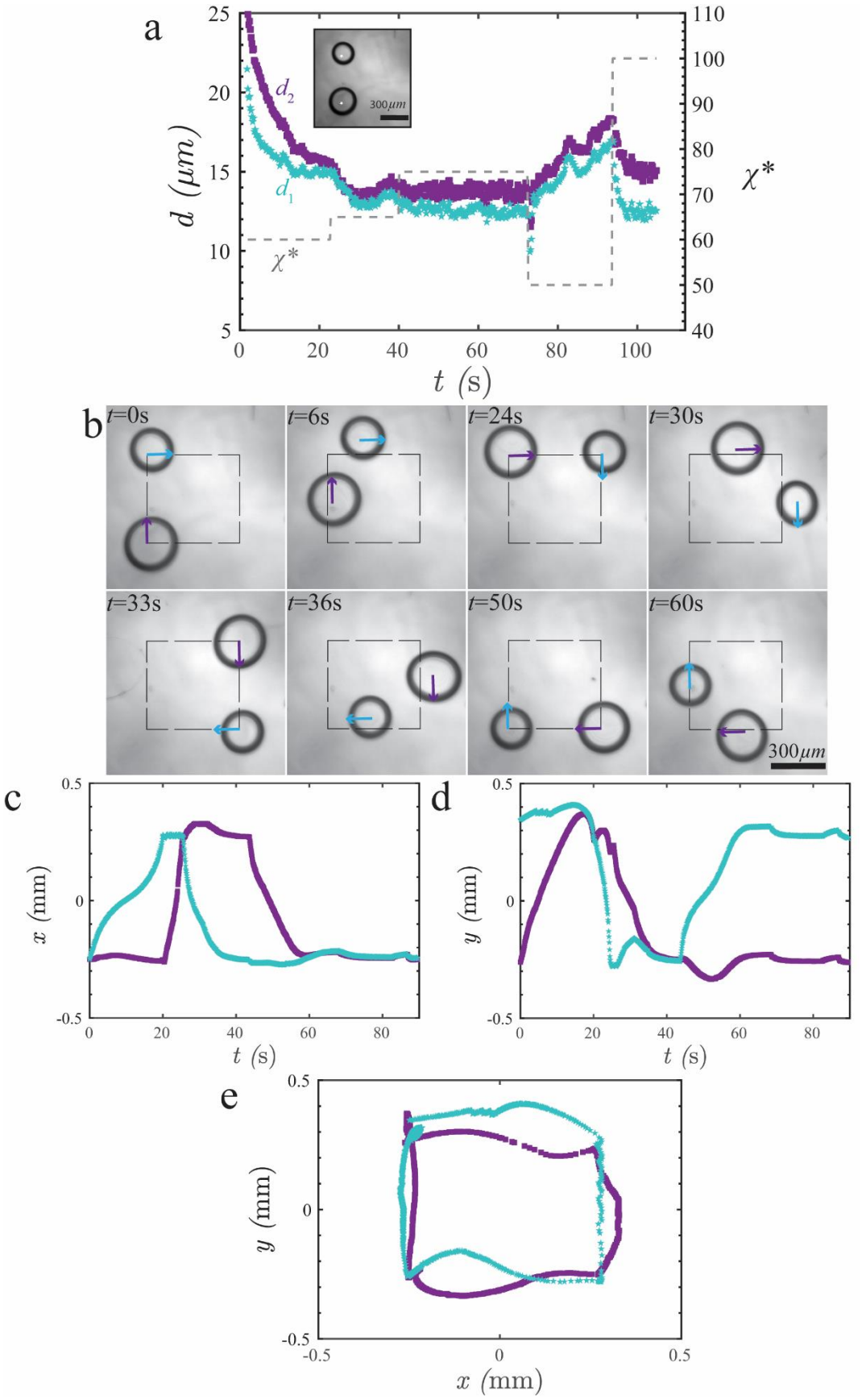
a
b
c
d
e
d_2
d_1
χ^*
$d\ (\mu m)$
$t\ (s)$
$x\ (mm)$
$y\ (mm)$
300μm
t=0s
t=6s
t=24s
t=30s
t=33s
t=36s
t=50s
t=60s

图 8。 硅油中两个赫勒-肖全氟萘烷液滴（半径分别为 100 和 125 微米）的操控。通道深度（H）为 100 微米。(a) 液滴在某一位置保持 100 秒，其间液滴中心与目标位置之间的距离（d）（左侧纵轴所示）波动在 5% 至 8% 的误差范围内。操控过程中χ^* 的数值（灰色虚线）显示在右侧纵轴上。(b) 液滴沿预定义路径移动。χ^* 的数值主动在 100 至 180 的范围内变化：液滴接近目标点时，χ^*较大；液滴远离目标点时，χ^* 较小。本例的总循环时间为 84 毫秒。当两个液滴到达距目标点一定距离以内（本实验中为 20 微米）时，目标点会更新，液滴随即朝下一组目标点移动。(c-d) 液滴中心位置在 x 和 y 方向上的变化随时间的变化，以及 (e) 图 b 中沿预定义路径移动的两个液滴中心的轨迹。

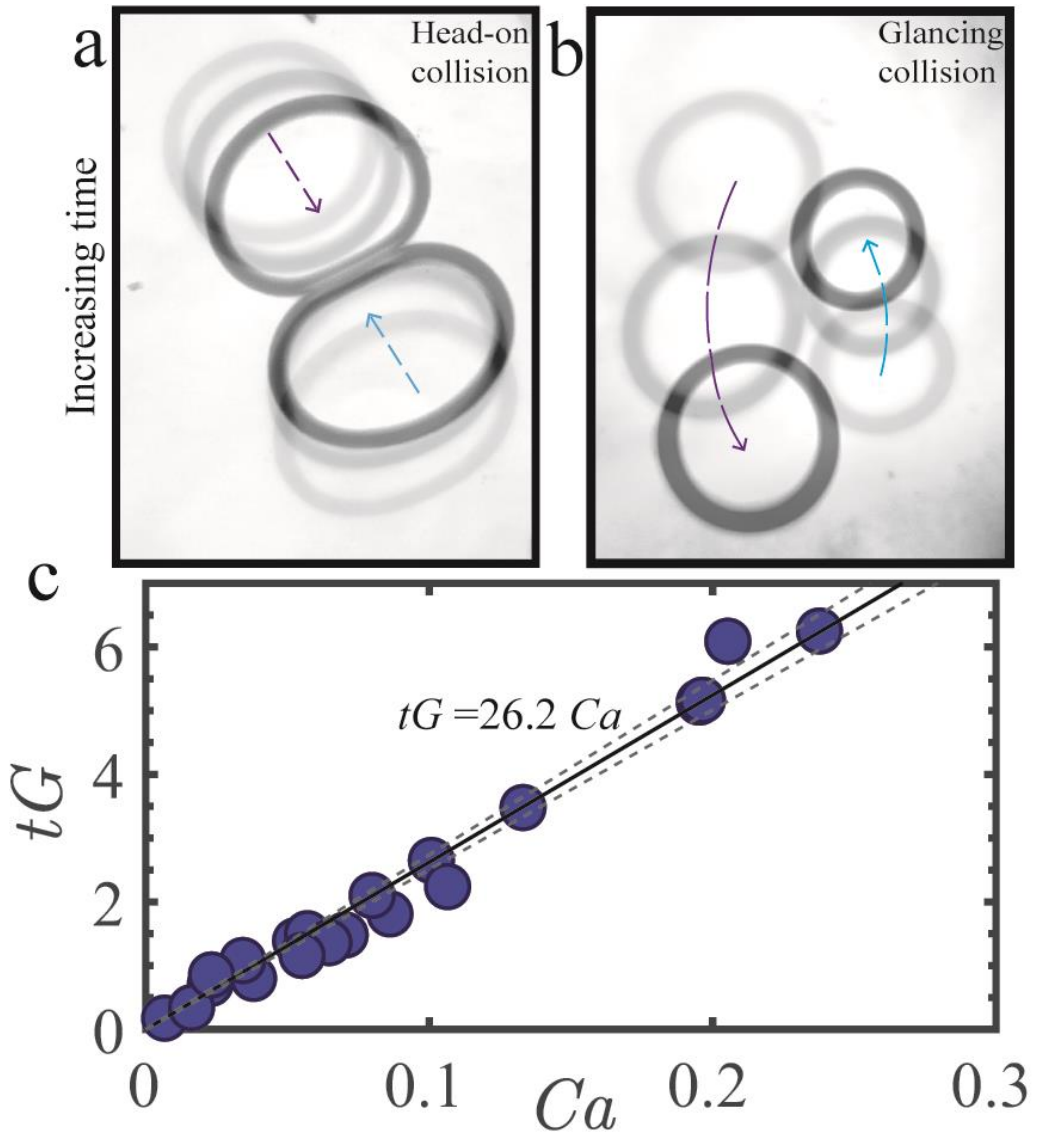

图 9. 两个赫勒-肖全氟萘烷液滴在 (a) 正面碰撞和 (b) 擦碰构型下发生碰撞的示例。擦碰和正面碰撞所需的时间分别为 13 秒和 6 秒。(c) 硅油中赫勒-肖全氟萘烷液滴正面碰撞时，无量纲排液时间 (tG) 随毛细数 (Ca) 数的变化；排液时间按 $t\sim \frac{\lambda\mu R_P}{\gamma}\frac{\sqrt{H}}{\sqrt{f}}\mathrm{h}$ 标度变化，其中 λ 为黏度比，μ 为悬浮相的黏度，γ 为界面张力，h_f 为最终液膜厚度。图中给出了线性拟合方程，95% 置信界限 (25.06,27.39) 以虚线表示。