微纳通道中牛顿流体毛细流动的研究进展

杨敏, 曹炳阳*

清华大学工程力学系, 热科学与动力工程教育部重点实验室, 北京 100084

* 联系人, E-mail: caoby@tsinghua.edu.cn

2015-09-17 收稿, 2015-10-15 修回, 2015-10-15 接受, 2016-01-02 网络版发表

国家自然科学基金(51322603, 51136001, 51356001, 51321002)和教育部新世纪优秀人才支持计划资助

摘要 毛细流动广泛存在于自然科学与工程技术等诸多领域, 微纳通道中毛细流动近年来在微纳机电系统、生物医学、环境监测、石油开采、多孔介质渗流等领域获得了广泛应用. 描述宏观牛顿流体毛细流动过程的是Lucas-Washburn(LW)模型, 该模型在微纳通道中的适用性还没有定论, 因而受到国际学术界关注. 本文从理论模型、数值模拟和实验研究3个方面综述了微纳通道中牛顿流体毛细流动的研究进展, 已有的研究表明需要对毛细流动进行分区讨论: (1) 惯性力作用区, 流动距离与时间 t 成正比; (2) 黏性力-惯性力作用区, 惯性力、毛细力、黏性力均对流动有影响; (3) 黏性力作用区, 黏性力与毛细力平衡, 流动距离与 $t^{1/2}$ 成正比; (4) 竖直管道中还需要考虑重力的影响, 存在黏性力-重力作用区. 在黏性力作用区, LW模型仍然可以定性描述微纳通道中毛细流动过程, 但需要引入动态接触角、气泡、电黏性等影响因素的修正. 最后针对目前实验研究中存在的一些问题, 总结有待深入研究的方向. 另外, 本文也对非牛顿流体毛细流动的研究做了简单介绍和展望.

关键词 微纳通道, 牛顿流体, 毛细流动, LW 模型

当把一根微细管插入液体槽时, 由于毛细作用, 浸润液体在细管中升高, 呈现出凹液面; 不浸润液体在细管中降低, 呈现出凸液面, 这种现象称为毛细现象(图1)^[1]. 毛细流动普遍存在于自然科学和工程技术中, 比如植物根部的根毛区通过毛细作用吸收土壤中水分^[2-5], 这些水分经根茎中的木质导管以毛细流动形式被输运到植物体的各个器官参与各种生化反应, 维持植物体内的光合作用、呼吸作用等正常生命活动. 在倒装芯片下填充工艺中, 液态封装材料在毛细力作用下将芯片和基板固化在一起, 这种方法成本低且可靠性高, 在封装领域得到广泛应用^[6,7]. 在石油开采中, 将水注入产层, 水在毛细力作用下把中、小孔喉或基质中的油气置换到高孔隙度、大孔喉或裂缝中, 从而实现石油的二次开采, 提高采收率^[8,9]. 另外, 毛巾吸水、多孔介质中流体的流动、纺

织品染色等现象, 也都与毛细现象有关.

近20年来, 微纳电子机械系统(MEMS/NEM)和纳米技术发展迅速^[10,11], 微纳通道中毛细流动规律对设计、制造、优化微纳流控器件有着重要的意义. 20世纪90年代提出的芯片实验室(lab-on-a-chip)^[12,13], 把化学及生物实验所涉及的操作单元集成到芯片上, 为化学和生物的反应过程及产物分析提供微平台. 芯片实验室在细胞检测、核酸分析、环境监测、血液化学分析等方面有着重要的应用, 该项技术可以大幅减少生物样本和化学试剂的消耗, 提高分析效率, 降低实验成本, 而实现该技术的重要部分是充分了解流体在微纳通道中的毛细流动过程^[14]. 另外, 近年来发展起来的多孔模板浸润方法^[15-18]将高分子材料熔融物或溶液放置在纳米孔阳极氧化铝模板(anodic aluminum oxide, AAO)上, 熔融物或溶液在毛

引用格式: 杨敏, 曹炳阳. 微纳通道中牛顿流体毛细流动的研究进展. 科学通报, 2016, 61: 1574-1584

Yang M, Cao B Y. Advances of capillary filling of Newtonian fluids in micro- and nanochannels (in Chinese). Chin Sci Bull, 2016, 61: 1574-1584, doi: 10.1360/N972015-00783

图1 (网络版彩色)毛细现象示意图。(a) 凸液面; (b) 凹液面

Figure 1 (Color online) Schematic of capillarity. (a) Convex meniscus; (b) concave meniscus

毛细作用下流入AAO模板中的纳米孔道,可制备得到聚合物纳米线阵列。该方法简便、高效,且制备出的纳米线阵列有独特的性能,例如高热导率、超疏水性等^[19-21]。

无论是在基础科学还是在工程应用中,毛细流动机理的研究一直受到学者们的关注和重视。早在一个世纪前, Lucas^[22]和Washburn^[23]就研究了牛顿流体在单根圆截面毛细管中的流动过程,建立了描述流动距离和时间之间关系的Lucas-Washburn(LW)模型。在该模型中,流体在毛细力作用下沿管道流动,毛细力与黏性力达到平衡,流动距离 $z(t)$ 与时间 t 的关系式:

$$z(t) = \sqrt{\frac{R\sigma_{LV}\cos\theta_0}{2\eta}}\sqrt{t}, \quad (1)$$

式中, R 表示管道半径, σ_{LV} 表示流体的表面张力, θ_0 表示流体与壁面间的静态接触角, η 表示流体动力黏度。LW模型忽略了重力和惯性力对流动的影响,并假设流体的黏度 η 、接触角 θ 在流动过程中不发生变化, t 时刻流动长度 $z(t)$ 与 $t^{1/2}$ 成正比(即符合 $t^{1/2}$ 规律)。在宏观尺度下,该模型与实验结果符合得较好^[23],但在微纳米尺度下,流体的黏度 η 、接触角 θ 等参数在流动过程中并不是常数,而是与双电层厚度、流动速度等有关的变量^[24-26],因此该模型并不完全适用于微纳米尺度下的毛细流动问题,需要引入一些修正^[27-29]。过去,由于实验设备的限制,牛顿流体在微纳通道中毛细流动机理的研究并未取得大的进展^[30]。近20年来,微纳制造加工工艺和纳米尺度测试技术有了巨大进步^[31-33],人们有条件对LW模型在微纳通道毛细流动的适用性开展实验研究和分析。另外,计算流体力学(CFD)、分子动力学(MD)、耗散粒子动力学(DPD)、格子玻尔兹曼(LBM)等数值方法也被应用到微纳通道毛细流动的研究中^[34-37]。这些先进的实验设备和模拟方法大大促进了人们对该问题的认识。

由于微纳通道中牛顿流体毛细流动过程的复杂

性,目前研究中仍存在着很多问题,如不同实验研究结果相差较大甚至完全相反,数值模拟的尺度与实验研究的尺度存在较大差异,结果难以进行定量对比等。鉴于此,本文综述了微纳通道内牛顿流体毛细流动的研究进展,对毛细流动理论研究的历史发展进行综述,讨论表面张力、重力、惯性力和黏性力对毛细流动状态的影响,指出对流动过程的分析需要进行分区讨论。总结了近20年来微纳通道中毛细流动模拟和实验研究进展,同时指出了目前存在的一些问题。另外,文中也对非牛顿流体毛细流动的研究做了简单介绍和展望。

1 毛细流动的理论研究进展

毛细流动的理论研究基本都是围绕LW模型展开,一方面讨论各作用力项对流动状态的影响,另外讨论接触角、黏度等参数在流动过程中的变化情况及其对实验、模拟结果的影响。本节着重讨论各力项对流动状态的影响,对于各参数在流动过程中的变化情况将在下一节结合实验和模拟进行讨论。

1.1 理论研究的历史发展

LW模型是Lucas^[22]和Washburn^[23]基于流动为泊肃叶流动,且惯性力、重力对流动的影响可忽略等假设推导出的。不可压牛顿流体在长圆柱形细管中作毛细流动时,牛顿动力学方程为^[38]

$$\rho \left[zz'' + (z')^2 \right] = \frac{2}{R} \sigma_{LV} \cos \theta_0 - \frac{8}{R^2} \eta zz' - \rho gz, \quad (2)$$

式中, ρ 表示流体密度, σ_{LV} 表示流体表面张力, θ_0 表示流体与管壁间的平衡接触角(静态接触角), η 表示流体动力黏度, z 表示流动长度, R 表示毛细管半径, g 表示重力加速度。(2)式各项分别代表(从左到右): 惯性力、毛细压力、黏性力和重力,忽略惯性力及重力影响后求解方程,得到(1)式,即LW模型。假设流体的 σ_{LV} 、 θ_0 、 η 等参数在流动过程中不变,那么斜率 $\sqrt{\frac{R\sigma_{LV}\cos\theta_0}{2\eta}}$ 在流动过程中不发生改变,流动长度 $z(t)$ 正比于 $t^{1/2}$,即符合 $t^{1/2}$ 规律。

对于矩形截面通道,(2)式可以写为

$$\begin{aligned} \rho \left[zz'' + (z')^2 \right] &= \frac{2(h+w)}{hw} \sigma_{LV} \cos \theta_0 - \frac{12(h+w)}{h^2w} \eta zz' - \rho gz, \end{aligned} \quad (3)$$

式中, h 为通道高度, w 为通道宽度。与(2)式处理方式

相同,忽略惯性力项及重力项的影响,且假设 $h \ll w$,求解方程得到流动长度与时间的关系式^[39]:

$$z(t) = \sqrt{\frac{h\sigma_{LV} \cos \theta_0}{3\eta}} \sqrt{t}. \quad (4)$$

可见,当流体的 σ_{LV} , θ_0 , η 等参数在流动过程中不变时,矩形截面毛细管中流体的流动长度 $z(t)$ 仍正比于 $t^{1/2}$,即符合 $t^{1/2}$ 规律. (1)式对时间 t 求导,得到毛细流动速度表达式

$$v(t) = \sqrt{\frac{R\sigma_{LV} \cos \theta_0}{8\eta}} \frac{1}{\sqrt{t}}, \quad (5)$$

当 $t \rightarrow 0$ 时, $v(t) \rightarrow \infty$,即流动速度趋于无限大,这与物理事实不符,原因是LW模型忽略了惯性力项,而惯性力在流动初期起着主导作用. 另外, LW模型也没有考虑重力的影响,而重力对竖直毛细管中流动后期会有较大影响.

1923年Bosanquet^[40]考虑惯性力项的影响,得到了毛细流动初期速度,即Bosanquet速度

$$U_B = \left(\frac{2\sigma_{LV} \cos \theta_0}{\rho R} \right)^{1/2}, \quad (6)$$

$$z(t) = U_B t, \quad (7)$$

(6)和(7)式表明流动速度在初期是常数,且流动距离与时间 t 成正比,这解决了初始时刻流动速度趋于无穷的佯谬. 然而, Bosanquet并没有考虑水槽中流体扰动以及进口能量损失对流动的影响,因此该理论速度高于实验值^[41,42].

1971年Szekely等人^[43]从能量守恒角度得到了毛细流动过程的控制方程,该方程包含了惯性力及入口效应对流动的影响. 不过与Bosanquet直接考虑惯性力项的处理方式不同, Szekely等人在毛细管入口处增加了一个表观质量项,并将入口处“vena contracta”效应带来的入口能量耗散考虑在内. 对半径分别为0.01和0.001 cm毛细管的数值求解结果表明,所得结果与LW模型相比,能够避免初始时刻速度无穷大的佯谬.

1996年Batch等人^[44]研究了重力项对竖直毛细管中流动过程的影响,结果表明重力项在流动初期对结果影响较小,而在流动后期会导致实验结果与理论值偏差较大,说明此时要考虑重力项的影响. 另外,对于水平毛细管(圆截面或者矩形截面),如图2,如果水槽中液体高度 H 较大时,此时流动的驱动力除

图2 (网络版彩色)水平毛细流动示意图

Figure 2 (Color online) The configuration of a horizontal capillary flow

了毛细力还有重力. 2004年Yang等人^[30]通过在驱动力中加入由于水槽中水高带来的重力项,得到了改进的模型

$$z(t) = \sqrt{z_0^2 + \frac{h^2}{4\eta} \left[\rho g H + \frac{2\sigma_{LV} \cos \theta_0}{h} \right]} \sqrt{t}, \quad (8)$$

式中, $Z_0 = Z(0)$, H 为水槽与通道中心线间的高度差. 该模型与实验结果符合较好,表明 H 较大时重力项不能被忽略. 2007年Jong等人^[45]得到了相似的结论.

1997年Quéré^[29]实验研究了惯性力对毛细流动过程的影响,结果表明在流动初期,相对其他作用力,惯性力起主导作用,流动距离 z 正比于时间 t ,并且发现如果流体的黏度较低,毛细管中流体会在平衡高度处发生振荡. 他还指出,惯性区向黏性区转变的时刻为 $t_c = \frac{\rho r^2}{4\eta}$,后来Siebold等人^[46]的实验结果也证实了这一点. 2000年Zhud等人^[38]从入口效应、惯性项、高阶黏性项等方面讨论了LW模型,指出毛细流动在不同时间尺度上应该有不同的流动规律. 另外,通过数值模拟和实验方法研究了毛细流动过程,证实振荡现象的存在.

2008年Fries和Dreyer^[47]研究了倾斜直毛细管中的流动情况,与之前文献的处理方式不同,他们引入Lambert函数进一步发展了LW模型,得到了考虑毛细力项、黏性力项和重力项的解析解,可以用来描述非水平毛细管流动后期的实验结果.

综上所述,毛细流动理论研究历史发展见表1.

1.2 毛细流动的分区

在毛细流动过程中,不同时间内流动的主导作用力不同,因此需要根据主导作用力的不同对毛细

表1 毛细流动理论研究的历史发展

Table 1 The historical development of the theory of capillary flow

年份	作者	研究内容
1918	Lucas ^[22] , Washburn ^[23]	分析流体在单根圆截面毛细管中的流动过程, 建立Lucas-Washburn模型(LW模型)
1921		
1923	Bosanquet ^[40]	考虑惯性力对流动影响, 提出Bosanquet速度
1971	Szekely等人 ^[43]	从能量守恒角度得到毛细流动过程控制方程, 该方程包含了惯性项及入口效应对流动的影响
1996	Batch等人 ^[44]	分析重力对竖直毛细管内流动过程影响, 提出在流动后期要考虑重力的影响
1997	Quéré ^[29]	提出惯性区向黏性区转变的时刻, 并被后来实验证实
2000	Zhmud等人 ^[38]	从入口效应、惯性项、高阶黏性项等方面讨论了已有模型, 指出毛细流动在不同时间尺度上应该有不同的流动规律. 另外, 通过数值模拟和实验研究证实振荡现象的存在
2004	Yang等人 ^[30]	从能量守恒角度推导出矩形截面微通道中LW模型, 通过在驱动压中添加由于水槽中水高带来的重力压项, 得到改进的理论模型
2008	Fries和Dreyer ^[47]	分析倾斜直毛细管中流动情况, 引入Lambert W函数进一步发展了LW模型, 得到考虑毛细力、黏性力和重力项的解析解, 可以描述非水平毛细管流动后期的实验结果

流动过程进行分区研究. 在微纳尺度下, 由于通道尺寸的减小, 惯性力与重力的相对重要性减弱, 导致相应的流动区域持续时间变短, 不过仍然有必要进行分区研究^[48-50], 以便弄清微纳尺度下毛细流动机理.

Fries和Dreyer^[51]对此做了系统的研究, 根据主导作用力的不同, 将牛顿流体的毛细流动过程分为4个区(图3).

(1) 惯性力作用区(purely inertial time stage). 假设接触角在流动过程不发生变化, 当毛细管刚接触到流体, 惯性力对流动起主导作用, 此时可忽略重力和黏性力影响, (2)式简化为

$$\rho \left[z z'' + (z')^2 \right] = \frac{2}{R} \sigma_{LV} \cos \theta_0. \quad (9)$$

求解上式得到流动长度与时间的变化关系为

$$z(t) = \sqrt{\frac{2\sigma_{LV} \cos \theta_0}{\rho R} t}, \quad (10)$$

上式表明, 只在惯性力和毛细力作用下, 流动速度为常数, 流动长度与时间呈线性关系, 这已被很多实验证实^[29,42].

(2) 黏性力-惯性力作用区(visco-inertial time stage). 毛细流动过了纯惯性力项作用区后, 就会进入黏性力-惯性力作用区, 此时惯性力、毛细力、黏性力均对流动有影响, (2)式改写为

$$z z'' + (z')^2 = \frac{2\sigma_{LV} \cos \theta_0}{\rho R} - \frac{8\eta}{\rho R^2} z z', \quad (11)$$

令 $a = \frac{8\eta}{\rho R^2}$, $b = \frac{2\sigma_{LV} \cos \theta_0}{\rho R}$, 解这个微分方程可得

$$z^2 = \frac{2b}{a} \left[t - \frac{1}{a} (1 - e^{-at}) \right]. \quad (12)$$

图3 毛细流动分区示意图^[48]Figure 3 Dimensionless diagram showing capillary flow partition^[48]

当 $t \rightarrow \infty$, 上式变为LW模型.

(3) 黏性力作用区(purely viscous time stage). 当管内流动为泊肃叶流动时, 毛细力由黏性力平衡, 得到LW模型.

(4) 黏性力-重力作用区(viscous and gravitational time stage). 对于竖直毛细管, 流体在毛细力驱动下沿管道上流, 流体到达一定位置后, 重力的作用不能忽视, 此时控制方程变为

$$\rho g z + \frac{8}{R^2} \eta z z' = \frac{2}{R} \sigma_{LV} \cos \theta_0, \quad (13)$$

求解得到

$$z(t) = \frac{\alpha}{\beta} \left[1 + W \left(-e^{-1-\beta^2 t / \alpha} \right) \right], \quad (14)$$

式中, $W(x)$ 表示Lambert函数, 其中

$$\alpha = \frac{\sigma_{LV} R \cos \theta_0}{4\eta}, \beta = \frac{\rho g R^2}{8\eta}.$$

综合分析,毛细流动过程受惯性力、毛细力、黏性力和重力的共同作用,不同力作用下,流动状态不同,需要进行分区来分析.目前的理论研究通过讨论各作用力项对流动状态的影响,以及讨论接触角、黏度等参数在流动过程中的变化情况及其对实验和模拟的影响,来改进LW模型,获得新模型,尽管这些新模型分别被一些实验所证实,但目前仍没有描述流动过程的通用模型.

2 微纳通道毛细流动的数值模拟研究

微纳通道中毛细流动过程持续时间短、影响因素多,且对实验设备、外部环境等要求较高,实验的可重复性差,因此很多学者采用计算流体力学(CFD)、分子动力学(MD)、耗散粒子动力学(DPD)、格子玻尔兹曼(LBM)等方法对此开展了数值模拟研究.

2.1 计算流体力学方法(computational fluid dynamics, CFD)

Yang和Przekwas^[52]在MEMS高速发展的背景下,于1998年首次对高125 μm 、长1.875 mm微通道中的毛细流动过程进行了数值模拟.使用CFD软件中的VOF模型(流体体积比函数)来追踪气液接触面,同时用CSF模型(连续表面张力模型)计算流动过程中的毛细力,模拟结果与理论符合较好. Huang等人^[34]使用结合了VOF模型的SIMPLE算法模拟了二维通道中的毛细流动过程并与实验作了对比,模拟结果与实验符合得较好. 在小Bond数(可忽略重力影响)和小毛细数(可忽略动态接触角影响)条件下,使用表面能分析法推导出矩形截面微通道中的等效接触角模型(ECA),模拟的二维及三维毛细流动结果都证实了ECA模型的正确性. 另外,由于接触角与润湿性相对应,因此该模型可被用于预测流体与微通道表面间的润湿性能:等效接触角小于90°,微通道是亲水的,反之,则是疏水的. Saha和Mitra^[53]使用VOF模型模拟了去离子水和酒精在二维微通道中的毛细流动过程,通过交替出现的接触角来模拟通道底部的亲疏水性,模拟结果表明,由于微通道的上表面与底面的亲疏水性不同,弯液面表面外形是非对称的.

2.2 分子动力学方法(molecular dynamics, MD)

Supple和Quirke^[54,55]使用MD研究了碳纳米管中

油及癸烷毛细流动过程,发现流动速度非常快,流动距离与时间 t 呈线性关系,与宏观的LW模型不符. 而Dimitrov等人^[56,57]的MD结果发现在极短时间(几个纳秒)之后,浸润长度与 $t^{1/2}$ 成正比. 由于Supple和Quirke模拟时间在几个纳秒量级, DIMITROV等人猜测前者模拟的仅是毛细流动初期,此时惯性力起主导作用. Martic等人^[35]将MD用于单根圆柱形毛细管内的流动研究,发现浸润过程符合 $t^{1/2}$ 规律,不过斜率偏离理论值,这是因为动态接触角的影响,通过引入Blake和Haynes^[58]基于分子动理论得到的动态接触角模型,建立了新的毛细流动模型,与数值模拟结果符合较好,这证实接触角在毛细流动过程随速度变化,并不是常数. 不过, Ahadian和Kawazoe^[59]使用MD方法研究了流体与壁面作用力不同时LW模型的适用性,发现在大多数情形下, LW模型仍然适用,少部分不适用情形是由于动态接触角的影响,分析了基于流体力学^[26](Cox方程)和分子动理论^[58]得到的动态接触角模型,发现Cox方程与LW模型结合能够解释LW模型不适用的情形. 除了LJ流体,很多学者还对聚熔物在纳米管中的毛细流动进行了模拟研究. 例如Dimitrov等人^[56]研究了聚熔物在纳米管中的毛细流动过程,发现流动长度仍与 $t^{1/2}$ 成正比,但流动过程中出现了滑移现象,通过在LW模型中引入滑移项来描述聚熔物的毛细流动过程.

2.3 耗散粒子动力学方法(dissipative particle dynamics, DPD)

与分子动力学模拟相比,使用耗散粒子动力学模拟毛细流动过程的时间及空间尺度均较大. Stroberg等人^[60]对水在孔径为5~20 nm的纳米孔内毛细流动过程进行了DPD研究,发现浸润距离与 $t^{1/2}$ 成正比,孔径越大,流动速度越快. 由于惯性力的影响,数值模拟结果表明流动初期流动距离与时间 t 成正比,这个时间段约持续1 ns,在研究的时间尺度下可以忽略. 他们考虑了动态接触角的影响,修正了LW模型.

2.4 格子玻尔兹曼方法(lattice Boltzmann method, LBM)

Kusumaatmaja等人^[61]对微通道中低黏度流体的毛细流动过程进行了LBM模拟,发现光滑微通道中的模拟结果与LW模型符合得很好,而内壁面修饰过的微通道模拟结果表明当脊状粗糙元垂直流体流动方向时,流动速度会降低甚至为零,而当障碍物平行

流动方向时,能提供额外的表面,从而提高流动速度,该发现对通过修饰微通道来控制流体流动提供了思路.在分离压力作用下,弯液面前有一层非常薄(1~2个分子层厚)的前驱膜(precursor film).在浸润过程中,首先是前驱膜的铺展,之后流体在前驱膜上流动. Chibbaro等人^[37]通过LBM方法研究了毛细流动过程中的前驱膜,发现当流体在毛细力作用下流过纳米通道时,在弯液面前会形成明显的前驱膜,且前驱膜的浸润距离正比于 $t^{1/2}$,与LW模型定性相符,但斜率比理论预测值大. Wolf等人^[62]对平板间的毛细流动过程进行了LBM模拟研究,考虑了惯性力影响,模拟结果与理论符合较好,尤其是考虑了动态接触角及毛细数修正.

综上,计算流体力学(CFD)可以在毫秒到秒的时间量级上模拟直径(或者特征尺寸)从微米到毫米量级通道中的毛细流动过程,模拟结果与LW模型符合得较好;而分子动力学(MD)、耗散粒子动力学(DPD)、格子玻尔兹曼(LBM)等方法则可以在纳秒的时间量级上对直径从几个纳米到几十纳米通道中的毛细流动过程进行模拟研究,模拟结果表明LW模型需要进行一些修正(比如考虑动态接触角)才能与模拟结果相符合,目前动态接触角模型有多种,但没有公认的普适模型.通过模拟,可以实时得到流体的动态接触角等参数,从而为进一步分析提供数据.与CFD方法相比,MD,DPD,LBM等方法还能获得流体的微观特征,比如粒子的分布情况、前驱膜的流动规律等,这些都很难用实验方法进行研究.

3 微纳通道毛细流动的实验研究

近年来微纳米加工技术不断进步^[63~67],人们能够精确制造出最小尺寸为几个纳米的通道并且对其中的流动进行测试.观测时间短、影响因素多、对实验设备和外部环境等要求高、实验的可重复性差是开展微纳通道中毛细流动实验研究的难点.

3.1 微米尺度毛细流动的实验研究

Geromichalos等人^[68]研究了水在相距10, 50 μm 的玻璃板间的毛细浸润过程,实验结果与LW模型吻合很好.而Yang等人^[69]使用高18.4 μm ,宽分别为15, 25, 50, 75 μm 的矩形及弯曲截面通道,研究了水、水-甘油混合物的毛细流动过程,提出综合考虑流型和通道截面形状的斜率表达式

$$k = \frac{2\sigma_{LV}h}{\eta} \frac{[2\cos\theta_0 - (1 - \cos\theta_0)\beta]}{\beta^2} g(\beta), \quad (15)$$

式中, $\beta = \frac{w}{h}$, $g(\beta)$ 是一个与 β 有关的函数.实验结果表明流动距离均与 $t^{1/2}$ 成正比,相同高度通道,宽度越小,则流速越快,与理论符合较好. Quéré^[29]对惯性区向黏性区转变过程开展了实验研究,提出惯性区向黏性区转变的时刻 $t_c = \frac{\rho r^2}{4\eta}$,这后来也被

Siebold和Nardin^[46]的实验证实.另外, Siebold和Nardin还发现,虽然实验结果符合 $t^{1/2}$ 规律,但斜率要小于理论值.作者认为这是由于LW模型忽略了动态接触角的影响.实验结果表明动态接触角随流动速度的增大而增大,与毛细数呈线性关系. Yang等人^[30]以及Jong等人^[45]还从能量守恒角度推导出矩形截面微通道中描述毛细流动过程的理论模型,该模型与实验结果符合较好.

3.2 纳米尺度毛细流动的实验研究

Tas等人^[39]实验研究了去离子水、NaCl溶液在高度分别为53, 111, 152 nm的矩形截面纳米通道内的毛细流动过程,发现流动距离正比于 $t^{1/2}$,与LW模型定性相符,但斜率小于理论预测值.作者将其归因于电黏性影响,电黏性使得流动阻力增大,导致实验斜率偏小.而Han等人^[70]做了类似实验,与Tas等人结果相似,实验结果符合 $t^{1/2}$ 规律,但斜率小于理论预测值,作者通过拟合实验数据计算出动态接触角,该值远大于静态接触角,将实验结果与理论预测的偏离归因于动态接触角影响.另外,实验还发现通道壁面对流体具有化学选择性.但是Oh等人^[14]做了类似的实验研究,指出通道壁面对流体并没有化学选择性.

Haneveld等人^[71]对去离子水在不同高度的矩形截面纳米通道中的毛细流动实验发现,实验结果符合 $t^{1/2}$ 规律,斜率小于理论值,他们认为需要综合考虑动态接触角、电黏性、通道几何效应、液-固间相互作用等因素进行分析,并提出无量纲修正因子 C 来表示这些因素的影响.实验中还发现 $z(t)-t^{1/2}$ 线的初期并不是直线,作者认为这可能是由于弯液面处液体的损失造成,液体损失的原因有蒸发、扩散、角流、薄膜流等,提出在模型中添加“-br”项来考虑液体损失影响

$$z(t) = a\sqrt{t} - bt = \sqrt{\frac{1}{C} \frac{\sigma_{LV}h\cos\theta_0}{3\eta}} \sqrt{t} - bt. \quad (16)$$

与其他学者发现实验斜率偏小的结果不同, Delft等人^[72]对水和酒精的毛细流动实验发现, 对于酒精来讲, 实验斜率小于理论值, 但是对于水, 斜率大于理论值, 作者认为这是由于流动过程中出现了气泡, 而气泡降低了流体流动时的黏性阻力. 气泡在微纳尺度下的毛细流动过程中经常出现^[39,70,71], Thamdrup等人^[73]对此做了专门的研究. 他们通过实验探讨了气泡对矩形截面纳米通道中毛细流动过程的影响, 通过精确测得通道中第一个气泡产生前后的各8个数据, 发现气泡的产生使得 $z(t)-t^{1/2}$ 的斜率变小, 气泡产生后的斜率比产生前斜率约小4%, 当气泡密度增大, 会使得实验斜率小于理论值.

除了牛顿流体, 一些学者使用纳米多孔模板浸润技术对聚熔物在纳米孔中的毛细流动过程开展了实验研究. 研究发现, 影响流动距离和速度的主要因素有温度、孔道半径、孔道内壁面特性等^[74], 随着温度的升高, 该过程会从部分浸润过渡到完全浸润^[75], 聚熔物的黏度变小, 流动的距离和速度都将变大. 实验还发现, 流动距离与 $t^{1/2}$ 成正比^[16,76], 这与LW模型定性相符, 不过斜率与理论预测值有偏离, 引起偏离的主要原因是聚熔物在纳米孔中发生了流变行为^[77,78]. Cao和Hu等人^[79,80]在LW模型中引入剪切速率对黏度影响的修正, 改进的模型可较好地描述实验结果.

3.3 实验研究的一些问题

(1) 目前的实验结果表明斜率偏离理论值, 有些偏小有些偏大, 对实验现象的解释也不同, 涉及到动态接触角、气泡、电黏性效应、液固间相互作用等诸多因素, 缺少统一的认识.

(2) 微纳通道的加工技术存在不足, 加工误差较大, 而且影响流动的因素很多, 这些都导致实验结果的准确性和可重复性受到制约.

(3) 由于测量技术的限制, 目前毛细流动理论中用到的静态接触角都取平板上测得的数据, 这可能误导对实验结果的解释. Li等人^[81]实验测得去离子水、正丙醇、正癸烷、原油在孔径为100~1000 μm 的玻璃毛细管中毛细流动过程的静态接触角, 实验结果表明该静态接触角远大于玻璃板上测得的静态接触角. 另外, 大量研究表明接触角在流动过程中会随着毛细数变化而变化^[26,46,58,82~84], 即所谓动态接触角, 动态接触角是导致微纳尺度下毛细流动实验或

模拟偏离理论预测值的重要原因之一. 目前缺乏依据微纳通道毛细流动特点提出的动态接触角模型, 现有模型无法解释实验结果. 已有实验中的动态接触角基本是通过拟合实验数据得到, 而不是直接测量得到, 缺乏足够的说服力. 由于在微纳通道中很难通过测量仪器实时测得接触角, 理论上得到的动态接触角模型在实验中很难得到验证, 因此动态接触角的研究非常重要.

(4) 电黏性效应也是导致微纳通道毛细流动实验值偏离理论预测值的重要原因之一. 有学者针对流动特点提出了电黏性效应的模型^[85,86], 不过这些模型无法解释现有实验结果, 另外模型数量非常有限, 因此急需对微纳通道毛细流动过程中的电黏性效应开展理论和实验研究.

4 结论与展望

微纳通道中牛顿流体的毛细流动在微纳机电系统设计、生物医学分析、石油开采等领域有着重要的研究意义. LW模型可以描述宏观毛细流动过程, 但在微纳尺度下的适用性一直是讨论的焦点, 近些年学者们围绕这个问题开展了大量的理论模型、数值模拟和实验研究工作. 理论分析、数值模拟及实验研究结果均表明, 需要对毛细流动进行分区研究: (1) 惯性力作用区, 流动距离与时间 t 成正比, 此时惯性力对流动起主导作用; (2) 黏性力-惯性力作用区, 惯性力、毛细力、黏性力均对流动有影响; (3) 黏性力作用区, 黏性力与毛细力平衡, 流动距离与 $t^{1/2}$ 成正比; (4) 竖直管道中还存在黏性力-重力作用区, 当流体到达一定位置后, 需要考虑重力的作用. 在纯黏性作用区, LW模型仍然可以定性描述微纳通道中的毛细流动过程, 不过, 模拟及实验得到的斜率均偏离理论预测值, 有些偏大, 有些偏小. 目前认为造成偏离的主要因素有: 动态接触角、电黏性、气泡、液-固间相互作用等. 综合分析, 微纳通道中毛细流动的研究还有一些问题亟待解决, 包括以下几方面.

(1) 微纳通道中毛细流动的影响因素众多, 目前实验都是通过仅考虑一种因素影响, 拟合实验数据得到动态接触角或黏性等参数变化规律, 缺乏相应的理论对实验结果展开综合分析, 迫切需要发展新的测量技术, 实现在流动过程中对接触角、黏性等参数的直接测量, 为实验结果的综合分析奠定可靠基础.

(2) 针对影响微纳通道毛细流动因素的理论分析

非常缺乏,前驱膜的变化规律及影响、接触线的变化及液固相互作用的影响、动态接触角模型、界面滑移影响、电黏性效应等方面研究均不够深入,现有理论很难解释实验或模拟中遇到的现象,因此急需加强理论研究,针对微纳通道毛细流动特点提出新的模型。

(3) 气泡在微纳通道毛细流动中普遍存在,对流动过程影响显著,气泡数量的多少及其在通道中出现的位置不同,对流动的影响也不同。目前对微纳通道中气泡的产生及其对毛细流动过程的影响缺乏系

统的研究。

(4) 鉴于影响微纳通道毛细流动的因素众多,需综合考虑各种影响因素,采用先进的数值模拟方法(例如大规模分子动力学模拟),建立描述流动过程的普适理论模型。

(5) 另外,非牛顿流体在微纳通道流动时会表现出滑移^[56]、剪切变稀^[77,78]、润湿性能突变^[75]等特殊现象,毛细流动过程变得更加复杂,这方面研究目前还非常缺乏。

参考文献

- 1 Teng X R. Surface Physical Chemistry (in Chinese). Beijing: Chemical Industry Press, 2009 [腾新荣. 表面物理化学. 北京: 化学工业出版社, 2009]
- 2 Zimmermann U, Schneider H, Wegner L H, et al. Water ascent in tall trees: Does evolution of land plants rely on a highly metastable state? *New Phytol*, 2004, 162: 575–615
- 3 Benkert R, Zhu J, Zimmermann G, et al. Long-term xylem pressure measurements in the liana *Tetrastigma voinierianum* by means of the xylem pressure probe. *Planta*, 1995, 196: 804–813
- 4 Canny M J. The xylem wedge as a functional unit—speculations on the consequences of flow in leaky tubes. *New Phytol*, 1991, 118: 367–374
- 5 Kirby A R, Gunning A P, Waldron K W, et al. Visualization of plant cell walls by atomic force microscopy. *Biophys J*, 1996, 70: 1138–1143
- 6 Kim Y B, Sung J. Capillary-driven micro flows for the underfill process in microelectronics packaging. *J Mech Sci Technol*, 2012, 26: 3751–3759
- 7 Wan J W, Zhang W J, Bergstrom D J. An analytical model for predicting the underfill flow characteristics in flip-chip encapsulation. *IEEE T Adv Packaging*, 2005, 28: 481–487
- 8 Aronofsky J S, Masse L, Natanson S G. A model for the mechanism of oil recovery from the porous matrix due to water invasion in fractured reservoirs. *Trans AIME*, 1958, 213: 17–19
- 9 Kazemi H, Merrill Jr L S, Porterfield K L, et al. Numerical simulation of water-oil flow in naturally fractured reservoirs. *Soc Pet Eng J*, 1976, 16: 317–326
- 10 Liu H, Bhushan B. Nanotribological characterization of molecularly thick lubricant films for applications to MEMS/NEMS by AFM. *Ultramicroscopy*, 2003, 97: 321–340
- 11 Craighead H G. Nanoelectromechanical systems. *Science*, 2000, 290: 1532–1535
- 12 Fan Z H, Harrison D J. Micromachining of capillary electrophoresis injectors and separators on glass chips and evaluation of flow at capillary intersections. *Anal Chem*, 1994, 66: 177–184
- 13 Manz A, Graber N, Widmer H Á. Miniaturized total chemical analysis systems: A novel concept for chemical sensing. *Sens Actuators B: Chem*, 1990, 1: 244–248
- 14 Oh J M, Faez T, de Beer S, et al. Capillarity-driven dynamics of water – alcohol mixtures in nanofluidic channels. *Microfluid Nanofluid*, 2010, 9: 123–129
- 15 Steinhart M, G Sele U. Polymer nanotubes by wetting of ordered porous templates. *Science*, 2002, 296: 1997
- 16 Yung K, Kong J, Xu Y. Studies on flow behaviors of polymer melts in nanochannels by wetting actions. *Polymer*, 2007, 48: 7645–7652
- 17 Kong J, Xu Y, Yung K, et al. Enhanced polymer melts flow through nanoscale channels under vibration. *J Phys Chem C*, 2009, 113: 624–629
- 18 Tian W, Yung K L, Xu Y, et al. Enhanced nanoflow behaviors of polymer melts using dispersed nanoparticles and ultrasonic vibration. *Nanoscale*, 2011, 3: 4094–4100
- 19 Cao B Y, Li Y W, Kong J, et al. High thermal conductivity of polyethylene nanowire arrays fabricated by an improved nanoporous template wetting technique. *Polymer*, 2011, 52: 1711–1715
- 20 Cao B Y, Kong J, Xu Y, et al. Polymer nanowire arrays with high thermal conductivity and superhydrophobicity fabricated by a nano-molding technique. *Heat Transfer Eng*, 2013, 34: 131–139

- 21 Cao B Y, Li Y W, Dong R Y, et al. Superhydrophobicity of self-organized surfaces of polymer nanowire arrays fabricated by a nano-injection moulding technique. *J Therm Sci Technol*, 2011, 6: 204–209
- 22 Lucas R. Rate of capillary ascension of liquids. *Kolloid Z*, 1918, 23: 15–22
- 23 Washburn E W. The dynamics of capillary flow. *Phys Rev*, 1921, 17: 273–283
- 24 Phan V N, Yang C, Nguyen N T. Analysis of capillary filling in nanochannels with electroviscous effects. *Microfluid Nanofluid*, 2009, 7: 519–530
- 25 De Gennes P G. Wetting: Statics and dynamics. *Rev Mod Phys*, 1985, 57: 827–863
- 26 Cox R G. The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. Part 1. Viscous flow. *J Fluid Mech*, 1986, 168: 169–194
- 27 Kuo J N, Wang W K. Capillary filling speed of ferrofluid in hydrophilic microscope slide nanochannels. *Microfluid Nanofluid*, 2015, 18: 57–64
- 28 Pesse A V, Warriar G R, Dhir V K. An experimental study of the gas entrapment process in closed-end microchannels. *Int J Heat Mass Transfer*, 2005, 48: 5150–5165
- 29 Quéré D. Inertial capillarity. *Europhys Lett*, 1997, 39: 533–538
- 30 Yang L J, Yao T J, Tai Y C. The marching velocity of the capillary meniscus in a microchannel. *J Micromech Microeng*, 2004, 14: 220–225
- 31 Kim E, Xia Y, Whitesides G M. Micromolding in capillaries: Applications in materials science. *J Am Chem Soc*, 1996, 118: 5722–5731
- 32 Perry J L, Kandlikar S G. Review of fabrication of nanochannels for single phase liquid flow. *Microfluid Nanofluid*, 2006, 2: 185–193
- 33 Ou Y W, Wang W. Fabrication and characterization of sub-100/10 nm planar nanofluidic channels by triple thermal oxidation and silicon-glass anodic bonding. *Biomicrofluidics*, 2014, 8: 5216
- 34 Huang W, Liu Q, Li Y. Capillary filling flows inside patterned-surface microchannels. *Chem Eng Technol*, 2006, 29: 716–723
- 35 Martic G, Gentner F, Seveno D, et al. A molecular dynamics simulation of capillary imbibition. *Langmuir*, 2002, 18: 7971–7976
- 36 Stukan M R, Ligneul P, Crawshaw J P, et al. Spontaneous imbibition in nanopores of different roughness and wettability. *Langmuir*, 2010, 26: 13342–13352
- 37 Chibbaro S, Biferale L, Diotallevi F, et al. Evidence of thin-film precursors formation in hydrokinetic and atomistic simulations of nano-channel capillary filling. *Europhys Lett*, 2008, 84: 605–609
- 38 Zhmud B V, Tiberg F, Hallsténsson K. Dynamics of capillary rise. *J Colloid Interface Sci*, 2000, 228: 263–269
- 39 Tas N R, Haneveld J, Jansen H V, et al. Capillary filling speed of water in nanochannels. *Appl Phys Lett*, 2004, 75: 3274–3276
- 40 Bosanquet C H. The flow of liquids into capillary tubes. *Phil Mag*, 1923, 45: 525–531
- 41 Kornev K G, Neimark A V. Spontaneous penetration of liquids into capillaries and porous membranes revisited. *J Colloid Interface Sci*, 2001, 235: 101–113
- 42 Andruk T, Monaenkova D, Rubin B, et al. Meniscus formation in a capillary and the role of contact line friction. *Soft Matter*, 2014, 10: 609–615
- 43 Szekely J, Neumann A W, Chuang Y K. The rate of capillary penetration and the applicability of the washburn equation. *J Colloid Interface Sci*, 1971, 35: 273–278
- 44 Batch G L, Chen Y, Macoskot C W. Capillary impregnation of aligned fibrous beds: Experiments and model. *J Reinf Plast Comp*, 1996, 15: 1027–1051
- 45 Jong W R, Kuo T H, Ho S W, et al. Flows in rectangular microchannels driven by capillary force and gravity. *Int Commun Heat Mass*, 2007, 34: 186–196
- 46 Siebold A, Nardin M, Schultz J, et al. Effect of dynamic contact angle on capillary rise phenomena. *Colloids Surf A*, 2000, 161: 81–87
- 47 Fries N, Dreyer M. An analytic solution of capillary rise restrained by gravity. *J Colloid Interface Sci*, 2008, 320: 259–263
- 48 Joly L. Capillary filling with giant liquid/solid slip: Dynamics of water uptake by carbon nanotubes. *J Chem Phys*, 2011, 135: 214705
- 49 Das S, Waghmare P R, Mitra S K. Early regimes of capillary filling. *Phys Rev B*, 2012, 86: 067301
- 50 Oyarzua E, Walther J H, Mejía A, et al. Early regimes of water capillary flow in slit silica nanochannels. *Phys Chem Chem Phys*, 2015, 17: 14731–14739
- 51 Fries N, Dreyer M. The transition from inertial to viscous flow in capillary rise. *J Colloid Interface Sci*, 2008, 327: 125–128
- 52 Yang H Q, Przekwas A J. Computational modeling of microfluid devices with free surface liquid handling. *International Conference on Modeling and Simulation of Microsystems, Semiconductors, sensors, and actuators*, Santa Clara, California, 1998. 498–505
- 53 Saha A A, Mitra S K. Numerical study of capillary flow in microchannels with alternate hydrophilic-hydrophobic bottom wall. *J Fluids Eng*, 2009, 131: 61202
- 54 Supple S, Quirke N. Rapid imbibition of fluids in carbon nanotubes. *Phys Rev Lett*, 2003, 90: 214501
- 55 Supple S, Quirke N. Molecular dynamics of transient oil flows in nanopores. II. Density profiles and molecular structure for decane in carbon nanotubes. *J Chem Phys*, 2005, 122: 697–708

- 56 Dimitrov D I, Milchev A, Binder K. Capillary rise in nanopores: Molecular dynamics evidence for the Lucas-Washburn equation. *Phys Rev Lett*, 2007, 99: 1–4
- 57 Dimitrov D I, Milchev A, Binder K. Molecular dynamics simulations of capillary rise experiments in nanotubes coated with polymer brushes. *Langmuir*, 2008, 24: 1232–1239
- 58 Blake T D, Haynes J M. Kinetics of liquid-liquid displacement. *J Colloid Interface Sci*, 1969, 30: 421–423
- 59 Ahadian S, Kawazoe Y. Evaluation of the Cox equation to derive dynamic contact angle at nanopores imbibition: A molecular dynamics study. *Mater Trans*, 2009, 50: 1157–1160
- 60 Stroberg W, Keten S, Liu W K. Hydrodynamics of capillary imbibition under nanoconfinement. *Langmuir*, 2012, 28: 14488–14495
- 61 Kusumaatmaja H, Pooley C M, Girardo S, et al. Capillary filling in patterned channels. *Phys Rev E*, 2008, 77: 601–611
- 62 Wolf F G, Dos Santos L O, Philippi P C. Capillary rise between parallel plates under dynamic conditions. *J Colloid Interface Sci*, 2010, 344: 171–179
- 63 Xia Y, Kim E, Zhao X, et al. Complex optical surfaces formed by replica molding against elastomeric masters. *Science*, 1996, 273: 347–349
- 64 Chou S Y, Krauss P R, Zhang W, et al. Sub-10 nm imprint lithography and applications. *J Vac Sci Technol B*, 1997, 15: 2897–2904
- 65 Xia Y, Rogers J A, Paul K E, et al. Unconventional methods for fabricating and patterning nanostructures. *Chem Rev*, 1999, 99: 1823–1848
- 66 Li D, Xia Y. Direct fabrication of composite and ceramic hollow nanofibers by electrospinning. *Nano Lett*, 2004, 4: 933–938
- 67 Gates B D, Xu Q, Stewart M, et al. New approaches to nanofabrication: Molding, printing, and other techniques. *Chem Rev*, 2005, 105: 1171–1196
- 68 Geromichalos D, Mugele F, Herminghaus S. Nonlocal dynamics of spontaneous imbibition fronts. *Phys Rev Lett*, 2002, 89: 104503
- 69 Yang D, Krasowska M, Priest C, et al. Dynamics of capillary-driven flow in open microchannels. *J Phys Chem C*, 2011, 115: 18761–18769
- 70 Han A, Mondin G, Hegelbach N G, et al. Filling kinetics of liquids in nanochannels as narrow as 27 nm by capillary force. *J Colloid Interface Sci*, 2006, 293: 151–157
- 71 Haneveld J, Tas N R, Brunets N, et al. Capillary filling of sub-10 nm nanochannels. *J Appl Phys*, 2008, 104: 14309
- 72 van Delft K M, Eijkel J C, Mijatovic D, et al. Micromachined Fabry-Perot interferometer with embedded nanochannels for nanoscale fluid dynamics. *Nano Lett*, 2007, 7: 345–350
- 73 Thamdrup L H J, Persson F, Bruus H, et al. Experimental investigation of bubble formation during capillary filling of SiO₂ nanoslits. *Appl Phys Lett*, 2007, 75: 163501–163505
- 74 Ali S, Tian W, Ali N, et al. Polymer melt flow through nanochannels: From theory and fabrication to application. *Rsc Adv*, 2014, 5: 7160–7172
- 75 Zhang M, Dobriyal P, Chen J, et al. Wetting transition in cylindrical alumina nanopores with polymer melts. *Nano Lett*, 2006, 6: 1075–1079
- 76 Hu G J, Cao B Y. Flows of polymer melts through nanopores: Experiments and modelling. *Therm Sci Technol*, 2013, 8: 363–369
- 77 Chien R, Jong W, Chen S. Study on rheological behavior of polymer melt flowing through micro-channels considering the wall-slip effect. *J Micromech Microeng*, 2005, 15: 1389–1396
- 78 Chen C, Chen S, Liaw W, et al. Rheological behavior of POM polymer melt flowing through micro-channels. *Eur Polym J*, 2008, 44: 1891–1898
- 79 Cao B Y, Yang M, Hu G J. Capillary filling dynamics polymer melts in nanopores: Experiments and rheological modelling. *RSC Adv*, 2016, 6: 7553–7559
- 80 Hu G J. Studies on the Incompletely Diffusive Energy Transport Phenomena (in Chinese). Dissertation of Doctor Degree. Beijing: Tsinghua University, 2014 [胡帼杰. 能量的非纯扩散传递现象研究. 博士学位论文. 北京: 清华大学, 2014]
- 81 Li X, Fan X, Brandani S. Difference in pore contact angle and the contact angle measured on a flat surface and in an open space. *Chem Eng Sci*, 2014, 117: 137–145
- 82 Wang X D, Peng X F, Wang B X. A review on dynamic wetting and dynamic contact angle (in Chinese). *J Basic Sci Eng*, 2004, 11: 396–404 [王晓东, 彭晓峰, 王补宣. 动态湿润与动态接触角研究进展. 应用基础与工程科学学报, 2004, 11: 396–404]
- 83 Hamraoui A, Thuresson K, Nylander T, et al. Can a dynamic contact angle be understood in terms of a friction coefficient? *J Colloid Interface Sci*, 2000, 226: 199–204
- 84 Heshmati M, Piri M. Experimental investigation of dynamic contact angle and capillary rise in tubes with circular and noncircular cross sections. *Langmuir*, 2014, 30: 14151–14162
- 85 Gong L. A dissertation submitted in partial fulfillment of the requirements for the degree of doctor of philosophy in engineering (in Chinese). Dissertation of Doctor Degree. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2008 [龚磊. 微流控系统流动—电场—离子运动多物理场耦合现象研究. 博士学位论文. 武汉: 华中科技大学, 2008]
- 86 Mortensen N A, Kristensen A. Electro-viscous effects in capillary filling of nanochannels. *Appl Phys Lett*, 2008, 92: 063110

Advances of capillary filling of Newtonian fluids in micro- and nanochannels

YANG Min & CAO BingYang

Key Laboratory for Thermal Science and Power Engineering of Ministry of Education, Department of Engineering Mechanics, Tsinghua University, Beijing 100084, China

Capillary filling is extensively involved in natural science and engineering technology, such as oil recovery, building conservation, ink printing, etc. Due to large surface to volume ratio, capillary action is very prominent at micro- and nonoscale regime, and recent years it has triggered a tremendous acceleration of research related to the capillary filling process in micro- and nanochannels. For instance, the capillary action is used to eliminate some additional accessories such as electric drive devices or syringe pumps, which can greatly simplify the design of microfluidic and nanofluidic devices. All these facts show that a thorough understanding of the kinetics of capillary-driven filling in micro- and nanochannels is of great significance. Almost a century ago, Lucas and Washburn reported an analytical solution for capillary filling of Newtonian fluids in a small cylindrical capillary tube: the filling distance is proportional to the square root of time, which is also known as the classical LW equation. Although the LW equation can well describe macroscopic capillary filling process, it's availability at micro- and nanoscale regime is still an open question, which has attracted a lot of attention. This paper summarizes the progress of capillary filling kinetics in micro- and nanochannels in views of theoretical models, numerical simulations and experimental studies. All the three perspectives indicate that the capillary filling process should be discussed by dividing into four stages as follows: (1) purely inertial time stage, where the filling distance is proportional to the time t ; (2) visco-inertial time stage, where the inertia force, capillary force and viscous force have comparable effect on the filling kinetics; (3) purely viscous time stage, where the capillary force is balanced by viscous force and the filling distance is linearly related to the $t^{1/2}$; (4) the gravity should be considered when the pipe is vertical and there is a viscous and gravitational time stage. In purely viscous time stage, the LW equation can qualitatively describe the capillary filling process in micro- and nanochannels. Quantitatively, however, significant deviations between the experiment or simulation results and theoretical expectations have been observed in capillary filling process. Although several factors are considered to explain the deviation, such as the dynamic contact angle, bubble formation, electro-viscous effect and other factors, there is no unified understanding on the capillary filling kinetics. Finally, possible pending problems are summarized based on the results in previous work. In addition, brief introduction and prospect have been made on capillary filling of non-Newtonian fluids.

micro- and nanochannel, Newtonian fluid, capillary filling, LW equation

doi: 10.1360/N972015-00783