

文章编号 1004-924X(2023)19-2850-07

低雷诺数高效类魔方结构微混合器

李欣欣^{1,2}, 吴一辉^{1*}

(1. 中国科学院 长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130031;
2. 中国科学院大学, 北京 100190)

摘要:为了在雷诺数条件不定的小尺寸的芯片内部集成高效的混合功能,根据菲克定律和布朗运动的爱因斯坦关系式提出了一种通过匹配接触面提高浓度差的策略来设计微混合器,对科恩达效应进行了扩展,分析了流体在通道表面的流动方向,从特定微通道模块中抽象出 4 种具体功能。通过模块的功能来预测和调控浓度梯度并构建微混合器。使用 4 种功能模块来旋转并匹配流体界面,设计了两种三维结构的被动式微混合器。采用三维 Navier-Stokes 方程组进行了数值分析,并通过软光刻工艺制作微混合器进行了实验验证。实验和仿真结果表明,在雷诺数为 0.1~100 内,设计的微混合器在 3.3 mm,即 22 倍水力直径长度处能稳定提供 94%~99% 的混合效率,在等水力直径条件下具有明显的优势,而且结构易于在芯片上集成,证明了模块化设计的优越性。

关键词:微流控;微混合器;分裂合并;旋转效应;片上实验室

中图分类号:TN492 文献标识码:A doi:10.37188/OPE.20233119.2850

Efficient low Reynolds number micromixer with magic cube structure

LI Xinxin^{1,2}, WU Yihui^{1*}

(1. Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences,
Changchun 130031, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

* Corresponding author, E-mail: yihuiwu@ciomp.ac.cn

Abstract: To integrate efficient mixing functions inside small chips with variable Reynolds numbers, this study developed a strategy for designing micromixers by increasing the concentration difference through matching contact surfaces based on Fick's law and Einstein's equation for Brownian motion. Subsequently, the Coanda effect was extended by analyzing the flow direction of the fluid over the channel surface and abstracting four functions from specific microchannel modules. These functions were used to predict and modulate the concentration gradient and construct the micromixer. Two three-dimensional structures of passive micromixers were designed using four functional modules to rotate and adjust the fluid interface. A three-dimensional Navier-Stokes system of equations was used for numerical analysis, and a micromixer was constructed via soft lithography for experimental verification. The experimental and simulation results showed that the designed micromixer consistently exhibits a mixing efficiency of 94%-99% at 3.3 mm,

收稿日期:2023-02-18;修订日期:2023-04-04.

基金项目:深海生物基因测序仪研究资助项目(No. 2C2019005496)

which is 22 times the hydraulic diameter length, for Reynolds numbers ranging from 0.1 to 100. This demonstrates a clear advantage over existing methods at an equal hydraulic diameter. Furthermore, the structure is easy to integrate on a chip, indicating the superiority of the modular design.

Key words: microfluidics; micromixer; split and recombination; rotation effect; lab on a chip

1 引言

分离、混合、称量等操作是微流控平台的基础操作。微混合器作为微流控领域一个重要的基础元件,目前,其混合效率的有效提高是目前的研究热点。

在微流尺度下,黏性力的影响占据主导地位,流体的流动形式是层流,缺乏横向扰动,物质的横向传输几乎只能通过液体界面上的分子扩散来实现,所以很难实现完全混合^[1]。为了在微流尺度下混合流体,研究人员设计出各种微型混合器,依据是否需要源器件提供干扰,可分为主动微混合器和被动微混合器^[2]。主动式微混合器可分为压力场驱动型^[3]、声波驱动型^[4]、磁场驱动型^[5]和电场驱动型^[6]等类型。被动式微混合器通常使用收敛发散^[7]、弯曲流道^[8]、设置挡板等障碍物^[9],以及混沌对流^[10]等方式来提高混合效率。其中,Raza和Kim等提出的微混合器水力直径为63.46 μm,在仅1.5 mm处,即约23倍水力直径可以达到87%~99%的混合效率,性能优于已有的被动式微混合器^[11]。

主动式微混合器大多拥有令人满意的混合效率,但需要将外部的有源器件、控制电路和电源集成在混合器上,制作困难。被动式微混合器廉价,尺寸也更小,不过被动式微混合器时常具有低雷诺数下性能不佳、混合路径长等不足。

本文提出了一种模块化的被动式微混合器设计方法。首先在科恩达效应的基础上加以扩展,并把扩展的结论命名为几何邻接判据。随后,用几何邻接判据确定了4种可以执行特殊功能的操作模块,通过模块来控制接触面进而调控浓度梯度,再依据不同的设计约束设计了两种微混合器,研究了两种微混合器在不同雷诺数下的性能表现,并通过软光刻工艺把性能更优的型号制作出实物进行了验证。

2 原理

2.1 微通道内部的扩散通量与扩散距离

分子扩散决定着低雷诺数下被动式微混合器的性能,单位截面的扩散通量由菲克定律描述:

$$J = -D\nabla C, \quad (1)$$

其中: J 是扩散通量, C 是浓度, ∇ 是梯度算子。当扩散系数 D 确定时,提高扩散通量的方法就在于提高扩散梯度势能,但随着扩散过程进行,物质分布变得均匀,浓度差异减小,扩散通量随之降低。因此,保持大的浓度梯度是设计策略的核心。

依据布朗运动的爱因斯坦关系式,物质扩散距离 x 与所需平均时间 t 的关系为:

$$x^2 = 2Dt, \quad (2)$$

其中 D 为扩散系数。对于扩散系数为 10^{-11} m²/s的物质,1 s扩散距离大约为4.5 μm,而微混合器结构尺度在百微米量级,当微混合器内不同试剂在短时间内接触时,一定程度上可以看作两个平面的混合。混合最剧烈的区域是接触面附近的薄层,而远离接触面的区域扩散距离长,扩散现象发生得十分缓慢。所以,在整个流场中应该重点关注接触面附近浓度梯度的增加。

2.2 功能的执行与模型设计

为了控制接触面的浓度梯度,急需一种方法和准则来预测并控制接触面附近的流体流动。

对于定常流动和准定常流动,流线不会交叉,在这种条件下,位于接触面位置的流体在形成接触前贴近流道壁面流动。因此,要控制接触面的浓度梯度,贴近流道壁面的流体流向至关重要。根据科恩达效应,当流体与它流过的表面存在表面摩擦时,只要曲率不大,流体会贴近该物体表面流动。该效应一定程度上揭示了贴近流道壁面的流体流向,本文在微通道内对该效应进行了扩展,分析了流体在4种特殊模块内的流动方向,并归纳为4种操作功能。

多边形流道的壁之间具有平行和相交的关系,一个壁面 A 至少存在两个直接相交面。在壁面 A 的多个相交面中,如果存在流道内流体速度矢量所指向的相交面,记作 A_L ,并定义为壁面 A 的几何邻接面。参考科恩达效应,贴近壁面 A 的流体越过相交线后,将贴近于所对应的几何邻接面 A_L 流动。这种扩展在这里被命名为几何邻接判据。为了简单地说明所提出的设计方法,并简化制造过程,这里只使用 4 种双层操作模块构建微混合器,并且不对尺寸等细节参数进行优化。

如图 1(a)所示,一个壁面可能同时成为两个或两个以上壁面的几何邻接面,这意味着多个壁面上的流体会富集于同一个几何邻接面,该几何结构的执行功能被称为邻接。如图 1(b)所示,单个壁面上的流体被拉伸,将该模块执行的功能称为延展。研究发现:在微混合器里,邻接模块在低雷诺数下表现较好,但当雷诺数大于 10,混合效率会逐渐下降;延展模块则在低雷诺数下表现不佳,但当雷诺数提高到 100 时可能会产生涡旋,使混合效率明显提高。

使用旋转效应时明确液体的旋转方向是非常有利的。在此处定义:液体流出的方向为正方向,由该视角来确定旋转方向是顺时针还是逆时针。图 1(c)和 1(d)分别展示了可以执行顺时针旋转和逆时针旋转的两种结构。旋转效应使匹配接触面像是转动的魔方方块。

图 1(e)展示了用基础的操作模块构成一个混合单元的示例。用蓝紫色代表低浓度的区域,用粉红色代表高浓度的区域(彩图见期刊电子版)。在确定正方向之后,明确所需匹配的表面以及旋转角度。在图 1(e)中,A,B 两个入口处的流体流过执行逆时针旋转 90° 的模块后,再通过邻接加以匹配。将发生接触的表面用粗黑线标记了,可以看出其接触后就获得一个理想的具有高浓度差的接触界面。使用延展模块时可以使用类似的方式进行设计。追求高浓度差还是低浓度差由设计目标决定。

图 1(f)展示了通过 4 种功能模块构建一个完整微混合器的例子。它由 4 个混合单元构成,混合单元的设计方法与图 1(e)相同。这种微混合器被命名为旋转匹配集成微混合器(Rotation

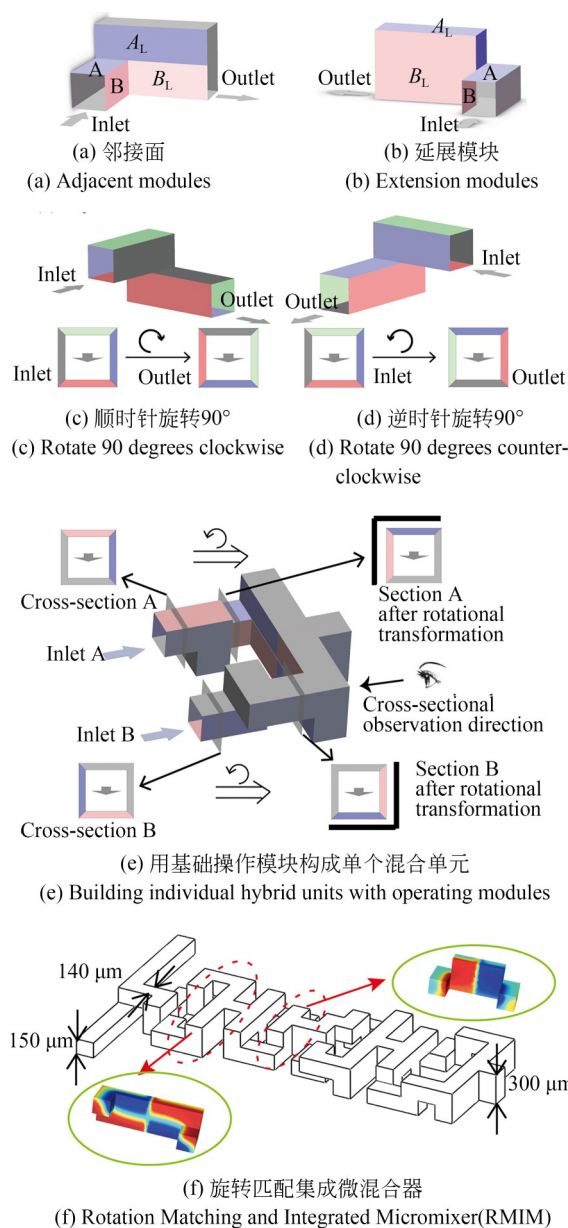


图 1 结构模块所执行的功能以及微混合器的设计方法
Fig. 1 Functions of structural modules and design methodology of micromixer

Matching and Integrated Micromixer, RMIM), RMIM 在旋转后使用邻接和延展两种模块进行匹配。其基本尺寸已经在图 1(e)中标出,其余未注明尺寸为 $150 \mu\text{m}$ 或 $150 \mu\text{m}$ 的整数倍,总长度为 $3\ 300 \mu\text{m}$ 。

基于不同的设计约束,使用图 1 所描述的模块化设计方法设计了两种微混合器,用于验证模块的特性和设计方法的可行性。

3 数值仿真

3.1 数值设置

本文使用商业软件 COMSOL Multiphysics 5.5 模拟该问题,不可压缩黏性流体在微流道中的动量方程为 Navier-Stokes 方程,需要与连续性方程同时进行求解,并使用随流传输方程确定浓度分布。通过在计算域内求解流场和控制方程,对所提出的微混合器进行了数值模拟,具体方程如下:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (3)$$

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \rho(\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} + \nabla P = \mu \nabla^2 \mathbf{u}, \quad (4)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla c = D \nabla^2 c, \quad (5)$$

其中: \mathbf{u} 是流体速度矢量, ρ 是流体密度, P 是流体压力, μ 是动力黏度, c 是物质浓度。

雷诺数是用来区分不同流动状态的无量纲数,在微混合器中是根据主通道的水力直径来计算的,混合器在不同雷诺数下的性能表现不同,适用场景也不同。微混合器能否在不同雷诺数下都表现出好的混合性能,取决于混合器设计的好坏。

$$Re = \frac{VD_h}{\gamma}, \quad (6)$$

其中: V 是流体速度, D_h 是主通道的水力直径,微混合器的水力直径是 $150 \mu\text{m}$, γ 是运动黏度,水在 25°C 下的运动黏度 $\gamma = 1 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ 。

为了兼顾计算精度和计算资源,选择网格数为 1 099 378 的模型进行数值研究。表 1 为数值仿真参数,入口处的初始浓度设置为 1 mol/L 和 0 mol/L , F_r 为每分钟通入微混合器入口处的流量。

表 1 仿真参数设置

Tab. 1 Parameter settings used for investigation

Case	$D_h/\mu\text{m}$	$F_r/(\mu\text{L}\cdot\text{min}^{-1})$	$D/(\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1})$	Re
1	150	0.9	1×10^{-11}	0.1
2	150	9	1×10^{-11}	1
3	150	90	1×10^{-11}	10
4	150	900	1×10^{-11}	100

3.2 混合效率的表征

仿真和实验得出的样品混合效率使用无量纲的相对混合指数进行表征,并以百分比形式表示^[12]。尺度从 0 到 1,0 表示完全未混合,1 表示完全混合。

$$\sigma = 1 - \frac{\sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=0}^N (C_i - \bar{C})^2}}{\bar{C}}. \quad (7)$$

在仿真结果中, C_i 是第 i 个网格点上的浓度, \bar{C} 表示完全混合时的浓度, N 表示点的个数。

在实验结果中, C_i 是像素点上的灰度, \bar{C} 是区域内灰度的平均值, N 表示像素点的个数。

3.3 数值仿真结果与讨论

通过数值模拟研究了雷诺数 Re 、操作模块和结构设计对混合效率的影响。

3.3.1 流体流向和混合界面

图 2 展示了染料在雷诺数为 0.1 时在不同微混合器结构下,不同横截面上的分布(彩图见期刊电子版)。两个完整结构图的色彩从蓝色到红色对应的浓度上下限为 $0 \sim 1 \text{ mol/L}$ 。局部的截面为了更清晰地展示染料浓度的分布区域,用各自截面的浓度上下限定义了浓度所对应的色彩,截面之间的色彩对比不具有实际意义。

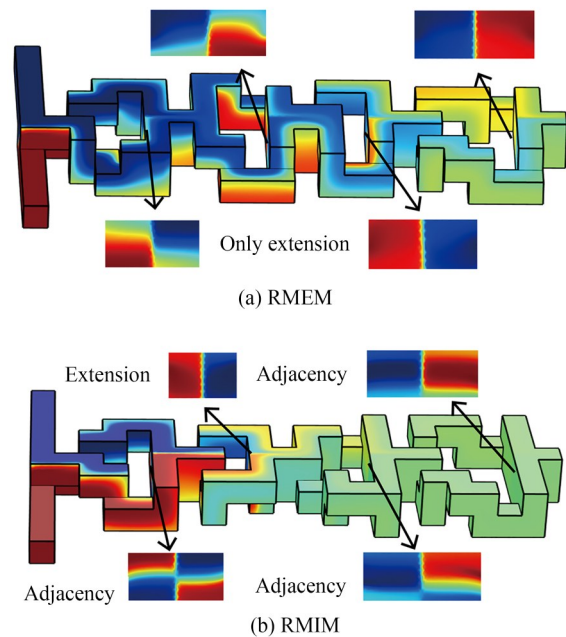


图 2 微混合器在 0.1 雷诺数下的浓度分布和混合界面
Fig. 2 Concentration distribution and mixing interface of micromixer at Reynolds number of 0.1

图 2(a)展示的是旋转匹配延展微混合器 (Rotation Matching and Extension Micromixer, RMEM), 在旋转后仅使用延展来匹配界面。在第一个和第二个混合单元中, 延展模块产生的界面并不能使界面上的物质完美混合, 会损失一部分混合效率。图 2(d)展示的是 RMIM, 第一个混合单元中使用了在该处表现较好的邻接, 第二个混合单元中使用了延展来规避邻接表现不佳的回合, 在第三和第四个混合单元中都使用了邻接, 从接触界面来看, 其混合表现较好, 从 RMIM 结构图上的浓度分布也可定性看出其混合效率更高。由此可知, 操作单元越多, 设计方法越灵活。

3.3.2 不同结构对雷诺数变化的响应

为了定量比较不同微混合器在不同雷诺数

下的混合效率, 用表 1 列出的参数对各个结构进行模拟。用式(7)计算各个截面的混合效率计算。图 3 展示了两种微混合器在不同雷诺数下的对比。如图 3(a)所示, RMEM 延展结构在雷诺数大于 10 以上时的混合系数得到较大的提高, 并且在所研究的雷诺数范围内随着 R_c 的提高而提高。图 3(b)中, RMIM 同时使用邻接结构和延展结构, 继承了邻接结构受雷诺数变化影响较小的优点, 而该结构在雷诺数较大时混合效率变低, 延展结构在一定程度上对其进行了补偿, 得益于两种结构的优势互补, RMIM 在所研究的雷诺数下的混合系数较高。雷诺数需求不同时, 可以有针对性地进行设计, 使微混合器在对应需求下得到最好的表现。

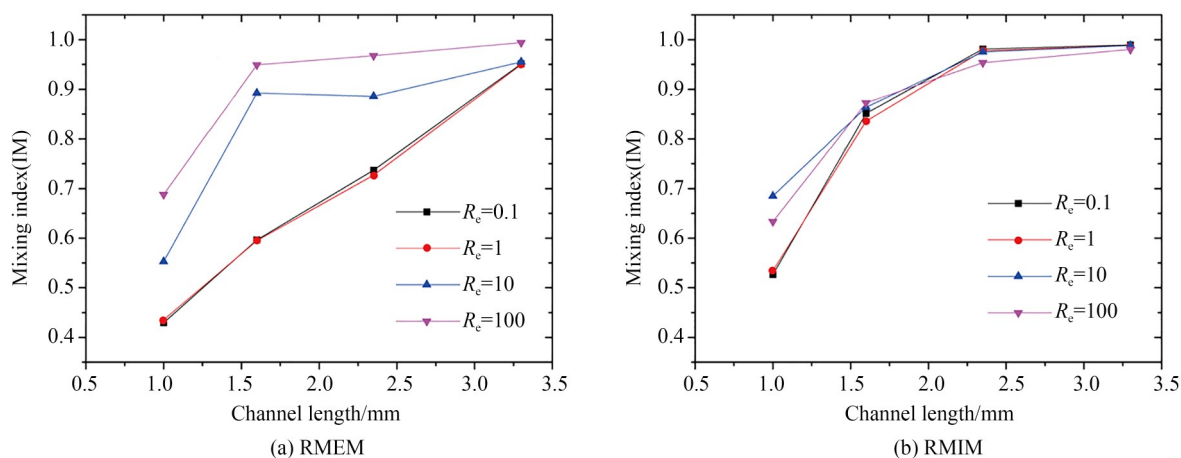


图 3 两种微混合器在 0.1~100 雷诺数下的混合性能

Fig. 3 Mixing performance of two micromixers with Reynolds number of 0.1~100

4 微混合器制造与实验

4.1 微混合器制造

RMIM 在大多数条件下表现良好, 所以选择 RMIM 加以制作。使用 PDMS 材料通过传统的软光刻工艺把 RMIM 进行浇筑, 模具结构材质为 SU8 光刻胶或者硅片。制作流程如图 4 所示。使用的单元都为双层结构, 因此第一步可以把混合器结构拆分成两层, 形成两个二维结构; 第二步制作具有对应结构的掩膜板; 第三步通过光刻, 烘烤以及刻蚀等配套工艺将掩膜上的图形转移

到硅片衬底上, 得到浇筑模具; 第四步使用 PDMS 浇筑, 当 PDMS 在 60 °C 下完成固化后即可脱模并切割, 获得上下两层结构; 随后经过 plasma 处理, 借助对准键合机进行对准键合即可完成 RMIM 的制作。

4.2 实验结果与分析

实验时, 先将黑色示踪剂用去离子水稀释 10 倍, 再将稀释后的示踪剂与去离子水通入微混合器进行混合。实验现象使用高速摄像机和体视显微镜进行记录。

图 5 展示了 RMIM 微混合器在不同雷诺数下的混合情况。受限于显微镜视场, 完整流道是

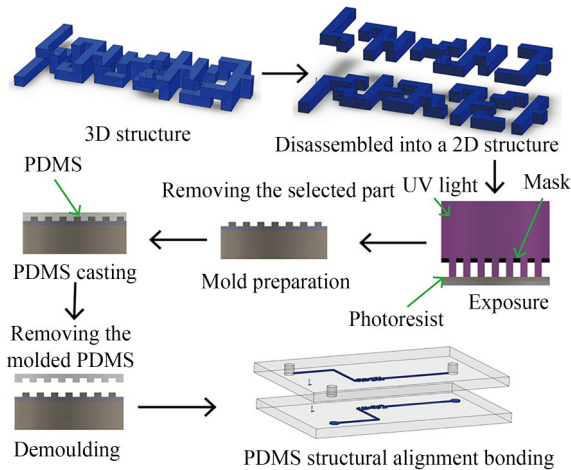


图 4 通过软光刻制造 RMIM 微混合器的流程示意图
Fig. 4 Schematic flow of RMIM fabricated by soft lithography

将两段图像进行拼接得到的。不过实验时在相近时间内拍下的两张图片,其流体形貌大体上是稳定的。

仿真结果取流道长度为 $3\ 300\ \mu\text{m}$ 处截面的混合效率,此时该截面位于 22 倍水力直径处 ($D_h=150\ \mu\text{m}$);对于图 5 所示的实验图像,取流道长度为 $3\ 150\sim 3\ 300\ \mu\text{m}$ 内的图像进行灰度化处理,并将黑色与白色所对应的灰度值进行翻转,用翻转后的像素灰度表征浓度,随后用式(7)对混合效率进行表征。在雷诺数为 0.1 和 100 时,混合效率分别为 99.03% 和 98.97%,与仿真结果几乎一致。在等价水力直径的条件下, RMIM 在不同雷诺数下的表现稳定在 94%~99%,表明仅使用当前提到的 4 种操作模块,本文提出的模块化设计方法同样可以设计出性能优异的微混合器。

5 结 论

本文提出了一种模块化的被动式微混合器

参考文献:

- [1] JAHN A, STAVIS S M, HONG J S, *et al.* Microfluidic mixing and the formation of nanoscale lipid vesicles[J]. *ACS Nano*, 2010, 4(4): 2077-2087.
- [2] BAYAREH M, ASHANI M N, USEFIAN A. Active and passive micromixers: a comprehensive

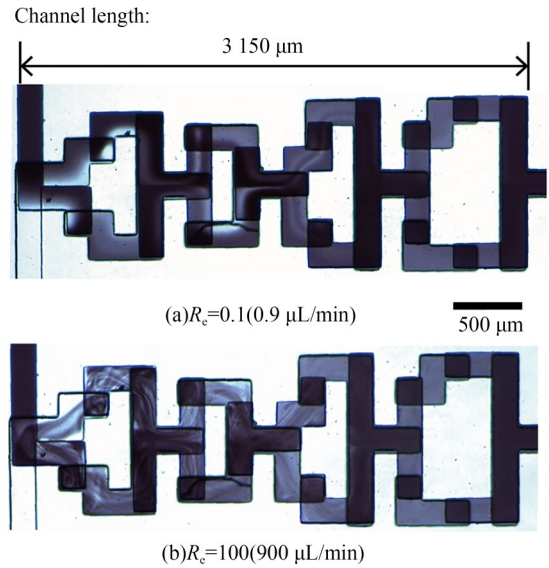


图 5 RMIM 微混合器在 0.1 和 100 雷诺数下的图像(使用 LONGER 注射泵,和 FASTCAM UX100 高速相机,×10 物镜)

Fig. 5 Experimental images of RMIM at Reynolds numbers of 0.1 and 100 (using the LONGER syringe pump and the FASTCAM UX100 high speed camera, with a ×10 objective)

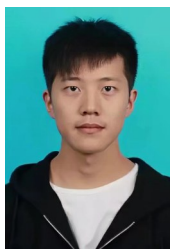
设计方法,给出了一种几何邻接判据并确认了 4 种操作功能,研究了几何结构对流体流向施加影响的方式。通过限制设计时所使用的操作模块的种类,设计了两种不同的无源微混合器,研究了两种微混合器在不同雷诺数下的混合表现以及混合界面的特性。实验结果表明,几何邻接判据可以一定程度上预测微通道中的流体流向,通过相对应的结构和功能可以对浓度梯度进行调控;增加操作模块的数量有利于选择更适合的功能去处理问题,也会使这种方法更加有效。RMIM 在 $3\ 300\ \mu\text{m}$ 长度,即 22 倍水力直径处, 0.1~100 的雷诺数内的混合效率能稳定在 94%~99%,在被动式微混合器中具有显著的优势。

review [J]. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 2020, 147: 107771.

- [3] OH K W, LEE K S, AHN B, *et al.* Design of pressure-driven microfluidic networks using electric circuit analogy [J]. *Lab on a Chip*, 2012, 12(3): 515-545.

- [4] ZHAO S G, HUANG P H, ZHANG H Y, *et al.* Fabrication of tunable, high-molecular-weight polymeric nanoparticles *via* ultrafast acoustofluidic micro-mixing[J]. *Lab on a Chip*, 2021, 21(12): 2453-2463.
- [5] AZIMI N, RAHIMI M, ZANGENEHMEHR P. Numerical study of mixing and mass transfer in a micromixer by stimulation of magnetic nanoparticles in a magnetic field[J]. *Chemical Engineering & Technology*, 2021, 44(6): 1084-1093.
- [6] DING H H, ZHONG X T, LIU B, *et al.* Mixing mechanism of a straight channel micromixer based on light-actuated oscillating electroosmosis in low-frequency sinusoidal AC electric field[J]. *Microfluidics and Nanofluidics*, 2021, 25(3): 1-15.
- [7] MONDAL B, MEHTA S K, PATOWARI P K, *et al.* Numerical study of mixing in wavy micromixers: comparison between raccoon and serpentine mixer [J]. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 2019, 136: 44-61.
- [8] FERNÁNDEZ-MAZA C, FALLANZA M, GÓMEZ-COMA L, *et al.* Performance of continuous-flow micro-reactors with curved geometries. Experimental and numerical analysis[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2022, 437: 135192.
- [9] HARRISON S, SANTANA, CALVO P V C, *et al.* Design, optimization and scale-up of a new micromixer design based on plate column for organic synthesis [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2022, 446: 137159.
- [10] 张贺, 杨爽, 揣荣岩, 等. 混沌流微混合器的性能优化[J]. *光学精密工程*, 2022, 30(3): 286-295. ZHANG H, YANG SH, CHUAI R Y, *et al.* Performance optimization of chaotic flow micromixer [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2022, 30(3): 286-295. (in Chinese)
- [11] RAZA W, HOSSAIN S, KIM K Y. Effective mixing in a short serpentine split-and-recombination micromixer [J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2018, 258: 381-392.
- [12] HASHMI A, XU J. On the quantification of mixing in microfluidics[J]. *SLAS Technology*, 2014, 19(5): 488-491.

作者简介:



李欣欣(1996—),男,湖北十堰人,硕士研究生,主要从事微流控技术及应用、微全分析系统芯片设计与制造等方面的研究。E-mail: lixinxin202@mails.ucas.ac.cn

通讯作者:



吴一辉(1965—),女,博士,研究员,博士生导师,中科院特聘研究员,是国家重点研发计划重点专项总体组专家,吉林省高级专家,中国微米纳米技术学会常务理事等,主要研究涉及微流控芯片、受激拉曼光谱仪、哈达玛双增益原子光谱仪、光子、声子传感及光学超分辨、光纤 WGMs、光纤无标超高灵敏度免疫传感器、激光多普勒干涉仪等。E-mail: yihuiwu@ciomp.ac.cn