

03

Особенности разрушения микроструи разбавленного полимерного раствора на основные и спутниковые микрокапли под действием внешнего вибрационного воздействия

© Н.А. Хомутов, А.Е. Семенова, М.В. Белоногов, Антонио Ди Мартино, Е.А. Хан, М.В. Пискунов

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
634050 Томск, Россия
e-mail: streetstoryteller@gmail.com

Поступило в Редакцию 3 августа 2022 г.

В окончательной редакции 14 октября 2022 г.

Принято к публикации 19 октября 2022 г.

Выполнено экспериментальное исследование морфологии ламинарного микроструйного потока разбавленных водных растворов альгината натрия без и с добавлением гидроксиэтилцеллюлозы после сопла, подверженного внешнему вибрационному возбуждению от действия обратного пьезоэлектрического эффекта. Изучено влияние концентрации полимера в растворе (0.5–5 mg/ml), расхода жидкости (4–26 ml/min) и частоты тока внешнего возмущения (0–1.2 kHz) на капиллярное дробление микроструи диаметром около $210\ \mu\text{m}$ в диапазоне чисел Онезорге от 0.046 до 1.88 и чисел Рейнольдса от 0.7 до 470. Выделены режимы течения микроструи и дробления на микрокапли с указанием границ переходов между ними и построена общая карта режимов. С учетом концентрации полимера в растворе показана зависимость длины разрушения микроструи от ее скорости. Установлены условия монодисперсного разрушения микроструи с равноудаленным расположением основных микрокапель в потоке, связанные с оптимальным балансом между молекулярной массой полимера в растворе, интенсивностью внешнего возмущения и временем релаксации напряжений в полимерных вязкоупругих микроструях. Изучена роль формирования структур типа „бусины-на-нити“ в капиллярном разрушении микроструи с идентификацией случаев отсутствия возникновения спутниковых микрокапель из жидкостных нитей между основными микрокаплями. Полученные результаты представляют прикладное значение для приложений на основе воздушной микрогидродинамики (биоинженерия и аддитивные технологии), работа которых основана на гетерогенных жидкостях.

Ключевые слова: неустойчивость Рэлея–Плато, обратный пьезоэлектрический эффект, монодисперсное дробление, время релаксации напряжений, микроструйный поток.

DOI: 10.21883/JTF.2023.01.54061.198-22

Введение

Управляемое разрушение ламинарной струи на микрокапли является ключевой стадией таких существующих и продвинутых технологий как струйная печать [1], инкапсуляция [2,3], аддитивное производство [4], микрофлюидика [5], особенно воздушная [3,6]. Для многих этих технологий характерное для жидкостей с низкой вязкостью формирование спутниковых капель [7], т.е. значительно меньших по размеру фрагментов жидкости, образующихся между основными каплями разрушенной струи, является весьма нежелательным явлением и требует внимания с точки зрения управления. Особенно это явление актуально ввиду активного задействования сложных по внутренней структуре и компонентному составу жидкостей в производственных циклах и научно-исследовательских лабораториях, для которых, как показали эксперименты с каплями и струями [5,7–11], существуют значительные отличия и характерные морфологические особенности в динамике жидкости по сравнению с однородными составами.

Разрушение струй однородных ньютоновских жидкостей на капли к настоящему моменту изучено до-

вольно хорошо [12,13]. Важно отметить классические исследования, в которых предпринимались попытки объяснения закономерностей формирования спутниковых капель [14,15] и даже контроля размеров основных и спутниковых капель [15]. Выявлено, что изменения длины волны возмущения, магнитуды возмущения и числа Вебера (We) представляют в качестве основных факторов, влияющих на формирование капель и их размеры.

Ситуация с исследованиями струй гетерогенных жидкостей является менее однозначной. С одной стороны, активное развитие технологий струйной печати, использующей сложные по компонентному составу чернила, начиная с 1970-х годов [12,14], способствовало развитию востребованных в настоящий момент технологий в области биоинженерии и аддитивного производства [3,16]. Эти технологии часто обеспечиваются жидкостями с уникальными компонентным составом и структурой, например, полимерными растворами [3] и жидкостями, проявляющими вязкоупругие свойства [5,7]. С другой стороны, для всех этих приложений, как отмечается в выше процитированных работах, до сих пор остается проблемой наличие бимодального распределения капель

Компонентный состав водных растворов полимеров и их свойства

№	Маркировка состава	Концентрация полимера в растворе (φ), mg/ml	Массовое соотношение ALG:HEC	μ , mPa·s	σ , mN/m	ρ , kg/m ³
1	0.5 mg/ml ALG + HEC	0.5	5:1	4.68	53.0 ± 0.2	955
2	2.5 mg/ml ALG + HEC	2.5	5:1	18.93	56.4 ± 0.1	1003
3	5 mg/ml ALG	5	—	205	58.6 ± 0.2	1021

по размерам, т.е. формирование спутниковых капель наряду с основными.

Существуют различные подходы к организации микроструйного потока, которые способствуют достижению условий упорядочивания элементов в рамках формируемого микрокапельного потока с точки зрения его морфологии (режимов, в которые „выстраиваются“ микрокапли) и размеров микрокапель. К основным из них относится физическая нарезка струйного потока на монодисперсные капли с помощью дополнительного устройства на основе режущего провода [17], основным недостатком которого является потеря жидкости при нарезке потока. Другими подходами являются электростатическое и вибрационное внешнее воздействие на наконечник сопла [3,18,19], тонкая настройка которых под конкретную жидкость позволяет достигать желаемых результатов в плане монодисперсного распределения размеров капель. Цитируемые исследования показывают, что управляемое разрушение микроструй на микрокапли за счет внешнего воздействия (электростатического поля, обратного пьезоэлектрического эффекта) имеет ряд недостатков, к которым в первую очередь относится строгая настройка системы под определенный состав жидкости, а кроме того, пассивность вязких жидкостей (например, полимерных растворов) к такому воздействию. Таким образом, эксперименты с перспективными уникальными (гетерогенными, неньютоновскими) составами, применяемыми или имеющими потенциал использования в конкретном практическом приложении, являются на данный момент востребованными и актуальными в целях формирования общей теоретической базы. В настоящей работе в качестве цели рассматривается экспериментальное изучение детальной морфологии ламинарного микроструйного потока водных растворов альгината натрия без и с добавлением гидроксиэтилцеллюлозы (в качестве загустителя раствора) после сопла, подверженного внешнему вибрационному воздействию за счет реализации обратного пьезоэлектрического эффекта, с выделением характерных режимов. Исследование морфологии потока будет включать особенности микроструйного и микрокапельного потоков с учетом поли- и монодисперсности распределения капель по размерам. Эта задача имеет прикладное значение для основанных на воздушной микрофлюидике технологий, для которых на данный момент проводятся наиболее продвинутое в

области взаимодействий типа „капля—струя“ исследования [3,6,18,20–22] со „сложными“ жидкостями.

Данное экспериментальное исследование мотивировано детальным изучением подхода управляемого дробления водных растворов биосовместимых полимеров под действием обратного пьезоэлектрического эффекта, предложенного в исследовании [3]. Детализация исследования необходима по мнению авторов с точки зрения выявления паттернов поведения (систем расположения в потоке) основных и спутниковых микрокапель и условий переходов между ними, а также условий исключения формирования последних. Это отражает научную новизну и практическую значимость работы применительно к технологиям аддитивного производства объемных модульных конструкций методами воздушной микрофлюидики [3,6,18].

1. Материалы

Для исследования процесса дробления микроструи использовались водные растворы альгината натрия без и с добавлением гидроксиэтилцеллюлозы (при массовом соотношении 5:1 соответственно) в качестве загустителя и в целом регулятора вязкости. Альгинат натрия (ALG) — линейный полисахарид — широко используется во многих биоинженерных приложениях, например, в трехмерной биопечати [3]. Гидроксиэтилцеллюлоза (HEC) — аминокислота растительного происхождения — применяется в гидрогелях [23] для более медленного высвобождения воды относительно растворов исключительно на основе альгината натрия, влияет на абсорбцию воды и биodeградацию конечного материала. Оба полимера водорастворимы, биосовместимы и способны к биodeградации. В таблице приведены используемые растворы, а также их свойства: динамическая вязкость (μ), коэффициент поверхностного натяжения на границе раздела „жидкость—воздух“ (σ) и плотность (ρ).

Вязкость исследуемых жидкостей определялась с помощью ротационного вискозиметра Brookfield DV3T LV (точность ±1%, диапазон измерений 1–6 · 10⁶ mPa · s). В таблице приведены средние значения вязкости, измеренные при скоростях сдвига 10 и 50 1/s. Коэффициент поверхностного натяжения на границе „воздух—жидкость“ определялся методом дю Нуи (полюстатическим методом определения поверхностного

натяжения) с использованием тензиометра Kruss K20 (точность $\pm 1\%$, диапазон измерений 1–999 mN/m). Плотность жидкостей определялась пикнометрическим методом. Для минимизации случайной погрешности проводилось не менее трех серий измерений для каждого образца при идентичных условиях.

Значения молекулярной массы (M_w) полимеров, используемых в исследовании, составляли 215 ± 35 kDa для соли альгиновой кислоты (альгината натрия) и 90 kDa для НЕС. Значение M_w для НЕС предоставлено производителем (Sigma–Aldrich). Значения M_w для альгината натрия оценены на основе данных ротационной вискозиметрии (см. таблицу) и данных, полученных из уравнения Марка–Куна–Хауинка $[\mu] = KM_w^\alpha$, связывающего характеристическую вязкость полимера в растворе и его молекулярную массу, где $[\mu]$ — характеристическая вязкость, [dl/g], K и α — константы для конкретной системы полимер–растворитель.

Времена релаксации напряжений в рассматриваемых полимерных растворах определены из выражения (1) для расчета диаметра нити d_f в момент времени t , которое является асимптотическим решением уравнения для тонкой нити максвелловской жидкости при допущении одноосного расширения цилиндра, соединяющего две сферы [24]. Микрокапли отделяются от микроструи полимерной жидкости в условиях предварительного формирования тонких жидкостных нитей между будущими микрокаплями [7]. Диаметры этих нитей d_f измерены в настоящей работе:

$$d_f = d_{f0} \exp\left(-\frac{t}{3\tau}\right), \quad (1)$$

где τ — время релаксации жидкости, [ms], d_{f0} — начальный диаметр нити, [m].

Время t рассчитывалось как $t = (d_{f0} - d_f)/U_j$, где U_j — скорость микроструи, [m/s], определяемая как отношение фактического расхода жидкости (m^3/s) к площади поперечного сечения микроструйного потока (m^2).

2. Экспериментальный стенд

На рис. 1 приведена экспериментальная установка, предназначенная для реализации управляемого дробления микроструи полимерной жидкости под действием обратного пьезоэлектрического эффекта на монодисперсные микрокапли.

Подача полимера осуществлялась шприцевым насосом SPLab02 с возможностью установки шприцов с соединением по типу Луер Лок. Данный насос предназначен для перекачивания жидкостей со сверхнизким расходом (0.831 nl/min–152.9 ml/min) и высокой точностью дозирования ($\pm 0.5\%$). Построена калибровочная кривая, показывающая отличия фактических (измеренных) расходов исследуемых полимерных растворов от

заданных на насосе (рис. 2). Фактический расход измерен с использованием мерной стеклянной посуды путем определения объема жидкости, перекаченного в течение 1 min. Во всех расчетах и на рисунках используется фактический расход жидкости.

Подача жидкости осуществлялась с помощью шприцевой иглы с тупым наконечником (длина металлической части 4 см, внутренний диаметр 0.21 mm, внешний диаметр 0.4 mm). Для крепления иглы разработан и напечатан на фотополимерном 3D-принтере каркас с необходимыми технологическими отверстиями (рис. 1, a). Пластмассовая часть иглы вставлялась в пазы каркаса для надежной фиксации, а металлическая часть иглы помещалась в специальный канал с поперечным сечением 2×2 mm (рис. 1, a). На расстоянии 10 mm от наконечника сопла в каркасе перпендикулярно относительно канала под металлическую часть иглы выполнено сквозное отверстие квадратного сечения со стороной 1.75 mm для установки пьезоактюатора (рис. 1, b).

Дробление потока водно-полимерного раствора проводилось с использованием многослойного пьезоэлектрического привода размерами $1.75 \times 1.75 \times 5$ mm (максимальный ход рабочей части 0–3.8 μ m, диапазон рабочих напряжений $U = 0–100$ V). Для подачи сигнала управляющего воздействия на пьезоактюатор и его усиления использовалась система, состоящая из модуля АЦП, усилителя напряжения и буферного усилителя напряжения.

Внешний модуль АЦП L-Card E14-140M, подключенный к ПК через USB, вырабатывал сигнал управляющего воздействия. По сигналу управляющего воздействия рабочий привод ударял по поверхности иглы. Для задания сигнала написана программа в ПО Labview (National Instruments). Данная программа позволяет формировать сигнал любой формы, а также задавать частоту переменного тока ($f = 0–2$ kHz), численно равную количеству колебаний пьезоактюатора. В данном исследовании форму сигнала представлял меандр — двухполярный сигнал прямоугольной формы. Частота тока f в данном исследовании варьировалась от 200 до 1200 Hz.

Для усиления сигнала с модуля АЦП (5 V) использовалась микросхема LM 4766t (Texas Instruments) с операционным усилителем. Реализованная схема мостового усилителя позволяет подавать на пьезоактюатор напряжение ± 30 V. В итоге максимальный размах напряжения достигал 60 V, что физически характеризует сжатие пьезоактюатора при подаче +30 V и его расширение при –30 V. Усилитель запитывался от источника питания QJ3005G III (выходное напряжение каждого регулируемого канала 0–30 V, точность установки 0.1 V, выходной ток каждого регулируемого канала 0–5 A, точность установки 0.01 A).

Для предотвращения короткого замыкания в модуле АЦП собрана схема буферного усилителя, предназначенная для согласования выходного сопротивления источника сигнала с входным сопротивлением нагрузки. В систему буферного усилителя входили стабилизаторы

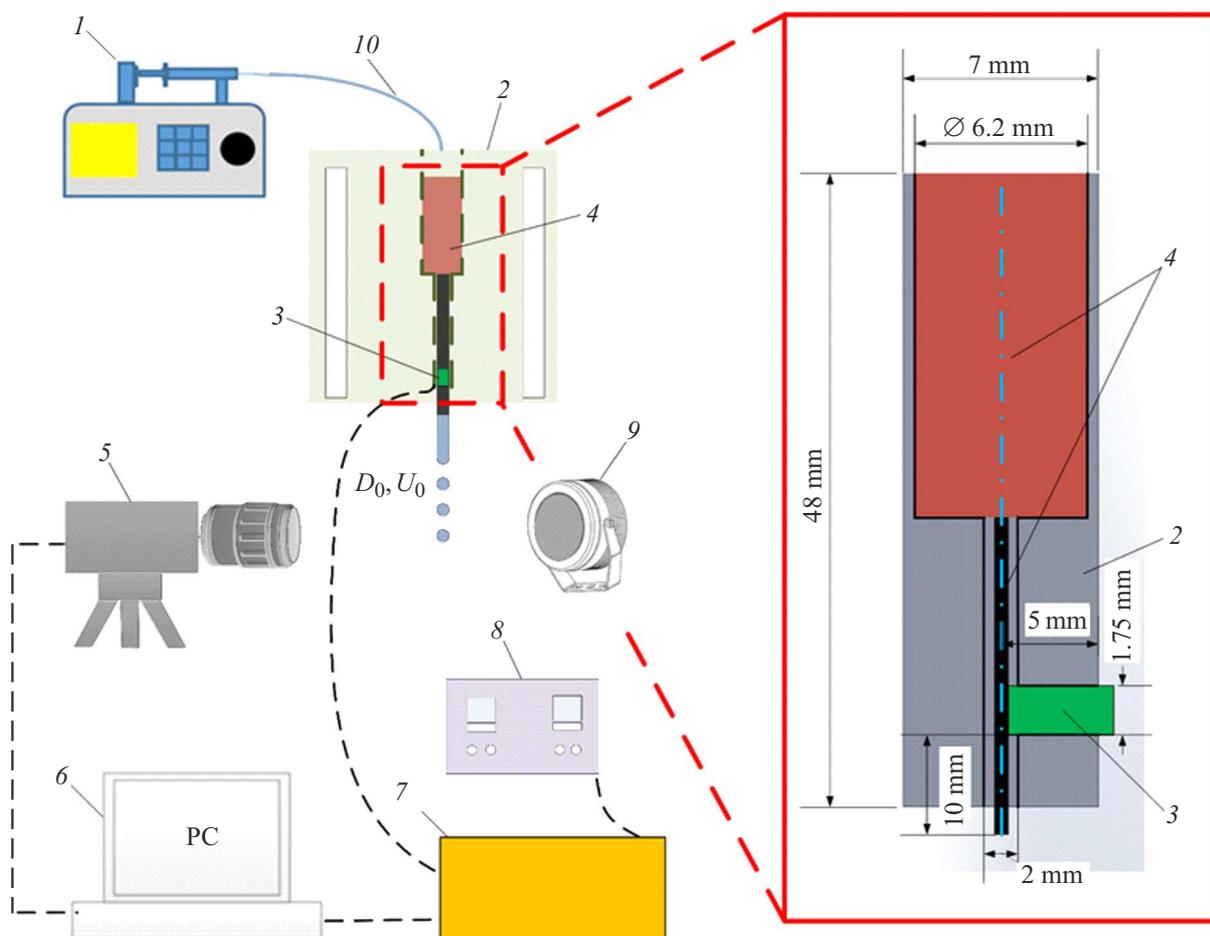


Рис. 1. Схема экспериментального стенда (а); схематическое изображение каркаса для крепления иглы, вид сбоку (b): 1 — шприцевой насос, 2 — каркас для крепления иглы, 3 — пьезоактуатор, 4 — сопло-полая игла, 5 — высокоскоростная видеокамера, 6 — ПК, 7 — система подачи сигнала и его усиления, 8 — источник питания, 9 — система освещения, 10 — шланг для перекачивания полимера.

напряжения L7812CV, L7912CV (ST Microelectronics), предназначенные для поддержания выходного напряже-

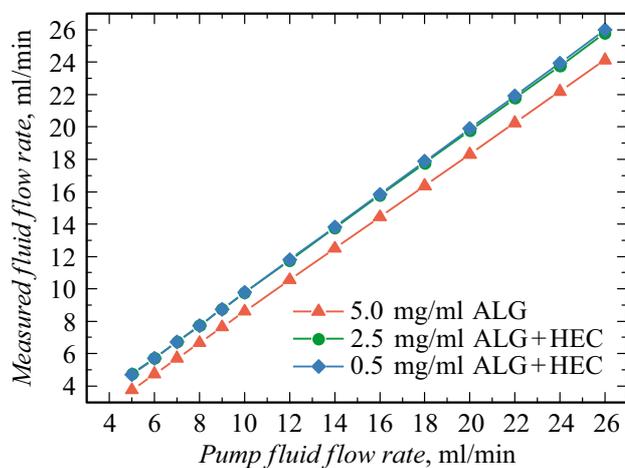


Рис. 2. Калибровочная кривая для заданного и фактического расходов полимерных растворов.

ния в узких пределах при существенном изменении входного напряжения и выходного тока нагрузки, а также микросхема TL072 (Texas Instruments).

Видеорегистрация процесса дробления струи жидкости проводилась сбоку под углом 90° относительно оси струи с использованием высокоскоростной видеокамеры Phantom Miro M310 (скорость съемки 10000 fps, разрешение 256×800 пикселей). Система фоновой подсветки для обеспечения высокоскоростной „теневого“ видеосъемки состояла из блока питания GSVITEC MultiLED G8 и двух прожекторов GSVITEC MultiLED QT с диффузорами для рассеяния света.

3. Результаты и обсуждение

Во всех проведенных экспериментах дробление потока осуществлялось двумя способами. Первый способ представляет дробление потока полимера естественным путем без применения пьезоактуатора, т.е. вследствие естественной неустойчивости Рэлея–Плато. Вто-

рой способ предусматривает использование пьезоактюатора при напряжении $\pm 30\text{ V}$ и $f = 200\text{--}1200\text{ Hz}$. Внешнее воздействие на сопло в виде вибрации от реализации обратного пьезоэлектрического эффекта позволяет добиться управляемого дробления микроструи, при котором происходит отделение монодисперсных микрокапель одного размера, летящих в рамках контролируемой системы расположения микрокапель в потоке. Ниже изучено, как неустойчивое поведение микроструи (с точки зрения морфологии) зависит от концентрации полимера (разд. 3.1.), расхода раствора (разд. 3.2.) и частоты тока внешнего воздействия (разд. 3.3.), при учете которых под действием вибрационного возмущения может происходить упорядочивание расположения микрокапель в потоке.

3.1. Влияние концентрации полимера в растворе на капиллярное дробление микроструи

Для изучения влияния концентрации полимера в растворе (см. таблицу) на управляемое дробление микроструи под действием внешнего вибрационного воздействия проведены эксперименты при постоянном расходе жидкости 5 ml/min и $f = 1000\text{ Hz}$.

В ходе экспериментов для всех исследуемых жидкостей управляемое дробление микроструи под действием пьезоэффекта обнаружено, начиная с частоты тока возмущения 1000 Hz . Отделение основных микрокапель от микроструи жидкости происходит в условиях формирования тонкой жидкостной нити (перемычки, мостика;

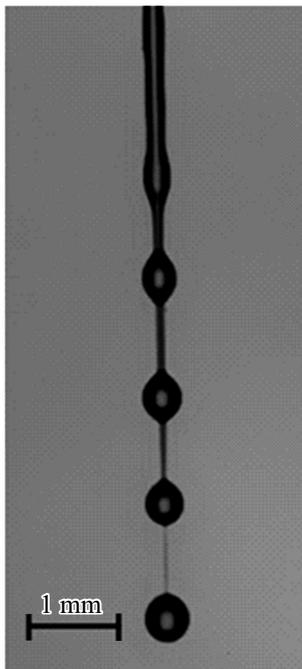


Рис. 3. Формирование жидкостных нитей между микрокаплями полимерного раствора 5 mg/ml ALG при расходе жидкости 5 ml/min ($U_j = 0.55\text{ m/s}$) и $f = 1000\text{ Hz}$.



Рис. 4. Визуализация процесса дробления микроструи полимерного раствора 5 mg/ml ALG при расходе жидкости 5 ml/min ($U_j = 0.55\text{ m/s}$) и $f = 1000\text{ Hz}$: *a* — управляемая неустойчивость Рэлея–Плато (режим „группами“); *b* — естественная неустойчивость микроструи при отсутствии внешнего воздействия.

такие структуры еще называют „бусины-на-нити“, от англ. *beads-on-string* [7,25–27]) (рис. 3), которая скоротечно истончается и дестабилизируется на отдельные спутниковые микрокапли размером от нескольких микрон до нескольких десятков микрон. Для раствора 5 mg/ml ALG длина разрушения микроструи уменьшается на 20% по сравнению со случаем естественной неустойчивости Рэлея–Плато (рис. 4). Особенность заключается в дроблении микроструи группами по $2\text{--}4$ основных микрокапли (рис. 4, *a*).

Как правило, далее стремительно происходит коалесценция сформированных таким образом спутниковых микрокапель с основными микрокаплями, движущимися выше по потоку. Установлено, что формирование жидкостных мостиков замедляет и вносит возмущения в дробление микроструи на монодисперсные микрокапли (основные). При дальнейшем движении потока нить дестабилизируется, и основные микрокапли движутся на близком расстоянии друг от друга в режиме „группами“. Для сравнения на рис. 4, *b* показано неустойчивое поведение потока жидкости при отсутствии внешнего воздействия.

Для раствора 2.5 mg/ml ALG + НЕС при внешнем воздействии длина разрушения микроструи уменьшается на 5% , а влияние вибрации на капиллярное разрушение микроструи также заключается в отделении основных микрокапель группами по $2\text{--}4$ штуки (рис. 5, *a*), в

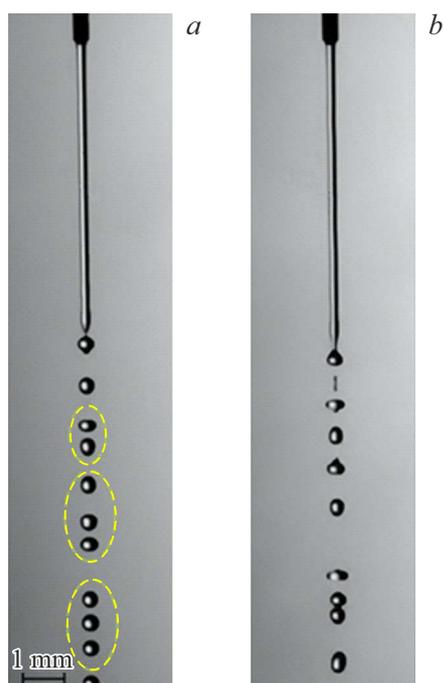


Рис. 5. Визуализация процесса дробления микроструи полимерного раствора 2.5 mg/ml ALG + HEC при расходе жидкости 5 ml/min ($U_j = 0.56$ m/s) и $f = 1000$ Hz: *a* — управляемая неустойчивость Рэлея–Плато (режим „группами“); *b* — естественная неустойчивость микроструи при отсутствии внешнего воздействия.

отличие от неупорядоченного формирования микрокапель в случае естественной неустойчивости микроструи (рис. 5, *b*). Однако в отличие от раствора 5 mg/ml ALG в данном случае между микрокаплями в рамках группы не наблюдается развитие жидкостных перемычек (рис. 5, *a*). Этот эффект объясняется установлением для раствора 2.5 mg/ml ALG + HEC подходящего оптимального баланса между молекулярной массой полимеров в растворе (215 ± 35 kDa для альгината натрия и 90 kDa для HEC) и концентрацией веществ (см. таблицу), интенсивностью внешнего возмущения (частота тока $f = 1000$ Hz) и временем релаксации напряжений ($\tau = 0.064$ ms) в полимерных вязкоупругих микроструях [7]. В случае раствора 5 mg/ml ALG (более высокая концентрация полимера) не используется HEC, и время релаксации выше ($\tau = 0.083$ ms). Наличие жидкостных нитей между основными микрокаплями в подобных исследованиях является косвенным признаком наличия вязкоупругих свойств (даже слабого их проявления) у исследуемого полимерного материала [4,7].

При капиллярном разрушении микроструи раствора 0.5 mg/ml ALG + HEC расстояние между основными микрокаплями становится практически равноудаленным (рис. 6, *a*) в сравнении со случаем естественной неустойчивости микроструи (рис. 6, *b*). Это означает, что в отличие от двух других исследуемых составов

(рис. 4, *a*, 5, *a*) в данном случае не образуется групп по 2–4 капли, а происходит монодисперсное дробление с определенной частотой, коррелирующей с интенсивностью внешнего вибрационного возмущения [7] от действия обратного пьезоэлектрического эффекта (т.е. в первую очередь от регулируемо подаваемой частоты тока). Однако форма основных микрокапель не является сферической, что скорее объясняется сравнительно низким коэффициентом поверхностного натяжения (см. таблицу), т.е. низким отношением поверхностной энергии к площади свободной поверхности жидкости, которого недостаточно для компенсации продольных деформаций микроструи, вызванных вынужденным возмущением (рис. 6, *a*). В свою очередь, длина волны возмущения обуславливает период колебания микроструи при продольной деформации [4,7].

Таким образом, увеличение концентрации полимера в растворе приводит к появлению групп микрокапель при капиллярном разрушении микроструи (растворы 2.5 mg/ml ALG + HEC и 5 mg/ml ALG) и появлению структур типа „бусины-на-нити“, которые дестабилизируют дробление микроструи (раствор 5 mg/ml ALG). Как отмечалось ранее, из-за увеличения концентрации полимера и времени релаксации напряжений происходит отклонение от оптимального баланса [7], определяющего монодисперсное разрушение микроструи как в плане размера основных микрокапель, так и с точки

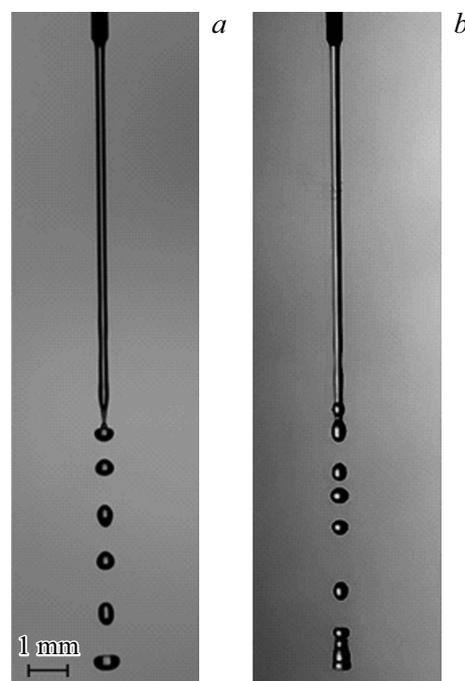


Рис. 6. Визуализация процесса дробления микроструи полимерного раствора 0.5 mg/ml ALG + HEC при расходе жидкости 5 ml/min ($U_j = 0.55$ m/s) и $f = 1000$ Hz: *a* — монодисперсное капиллярное дробление микроструи с равноудаленным расстоянием между основными микрокаплями под действием вынужденного возмущения; *b* — естественная неустойчивость микроструи при отсутствии внешнего воздействия.

зрения упорядоченности их движения (в отсутствии спутниковых капель) при равноудаленном расстоянии друг от друга. Полученные результаты качественно коррелируют с выводами в исследованиях [7,28].

3.2. Влияние расхода жидкости на капиллярное дробление микроструи

Для оценки влияния изменения расхода жидкости на неустойчивое поведение микроструи проведены эксперименты при расходах жидкости 4–26 ml/min с заданной частотой тока ($f = 1000$ Hz) внешнего возмущения для трех исследуемых водно-полимерных растворов. При этих условиях выделены три режима течения микроструи, наблюдаемых при различных расходах жидкости. На рис. 7 приведены характерные кадры для данных режимов на примере раствора 2.5 mg/ml ALG + HEC.

При низких расходах жидкости (5–8 ml/min) ламинарный поток микроструи имеет практически линейный профиль с едва различимой амплитудой и длиной волны возмущения, т. е. микроструя при возмущающем воздействии имеет минимальную кривизну относительно оси потока (рис. 7, *a*). При увеличении расхода жидкости до 9–10 ml/min наблюдается прогрессирование кривизны микроструи. Это отражается в виде волнообразной деформации профиля микроструи относительно оси потока с относительным увеличением амплитуды и длины волны возмущения (рис. 7, *b*). При дальнейшем увеличении расхода жидкости до 12–26 ml/min амплитуда

и длина волны возмущения значительно снижаются, а профиль микроструи приобретает форму пилообразного сигнала (рис. 7, *c*) с заметно перестраивающимся периодом колебания.

Поведение микроструи под действием вынужденного возмущения сильно влияет на характер ее разрушения на основные микрокапли. Исследование паттернов поведения (систем расположения в потоке) основных микрокапель в условиях варьирования расхода жидкости показало, что при 5–9 ml/min для раствора 0.5 mg/ml ALG + HEC происходит капиллярное дробление на монодисперсные микрокапли, двигающиеся на равноудаленном расстоянии друг от друга по крайней мере на дистанции в 15–20 диаметров основных микрокапель от места разрушения микроструи (рис. 6, *a* и 8, *a*). В то же время для растворов 2.5 mg/ml ALG + HEC и 5 mg/ml ALG при расходе жидкости 4–5 ml/min зарегистрирован режим „группами“ по 2–4 основных микрокапли, который сменяется на монодисперсное дробление уже при расходе 5–6 ml/min, в зависимости от жидкости. Для раствора 2.5 mg/ml ALG + HEC монодисперсное дробление на микрокапли наблюдалось при расходе 6–8 ml/min, а для раствора 5 mg/ml ALG — уже при 5–6 ml/min. При этом, когда расходы жидкости составляли 5–8 ml/min, средний (арифметический) диаметр формируемых микрокапель (d) оказывался наибольшим ($d \approx 0.23$ mm) при сравнении с большими расходами жидкости. При увеличении расходов для тестируемых жидкостей разрушение на микрокапли носит монодисперсный нерегулярный, но прогнозируемый характер. Это выражается в смещении траектории полета микрокапель от вертикальной оси, коррелирующей с положительной и отрицательной кривизной профиля микроструи при возмущении (рис. 7, *b*), а также в возможности предсказания расположения основных микрокапель в потоке (группами по 2–4 штуки) (рис. 8, *a*). Когда расход жидкости составлял 10–24 ml/min для раствора 5 mg/ml ALG и 18–26 ml/min для двух других жидкостей, траектория микрокапель в основном совпадала с осью потока (рис. 9), однако в данном случае внешнее возмущение полностью нарушило механизм отделения микрокапель (неустойчивость Рэлея–Плато). При этом сравнительно усилилось условие полидисперсности дробления с существенно неоднородным пространством между микрокаплями в полете (рис. 7, *c*).

Для обобщения морфологических наблюдений за поведением ламинарного потока водно-полимерных растворов до и после дробления на микрокапли на рис. 8, *a* приведена карта режимов течения микроструи (см. области разного цвета) и дробления на микрокапли (см. заштрихованные области с разными геометрическими символами), демонстрирующая их границы по расходам жидкости и концентрациям полимера в растворе. Карта построена в диапазоне расходов жидкости 4–26 ml/min и при заданной частоте тока ($f = 1000$ Hz) внешнего возмущения.

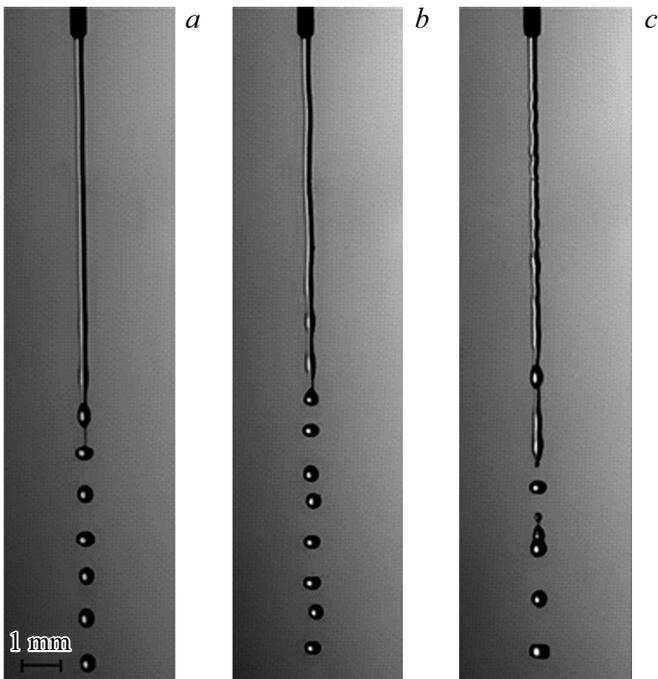


Рис. 7. Визуализация разрушения микроструи полимерного раствора 2.5 mg/ml ALG + HEC при значении частоты тока внешнего вибрационного возмущения $f = 1000$ Hz и следующих расходах жидкости: *a* — 5–8; *b* — 9–11; *c* — 12–26 ml/min.

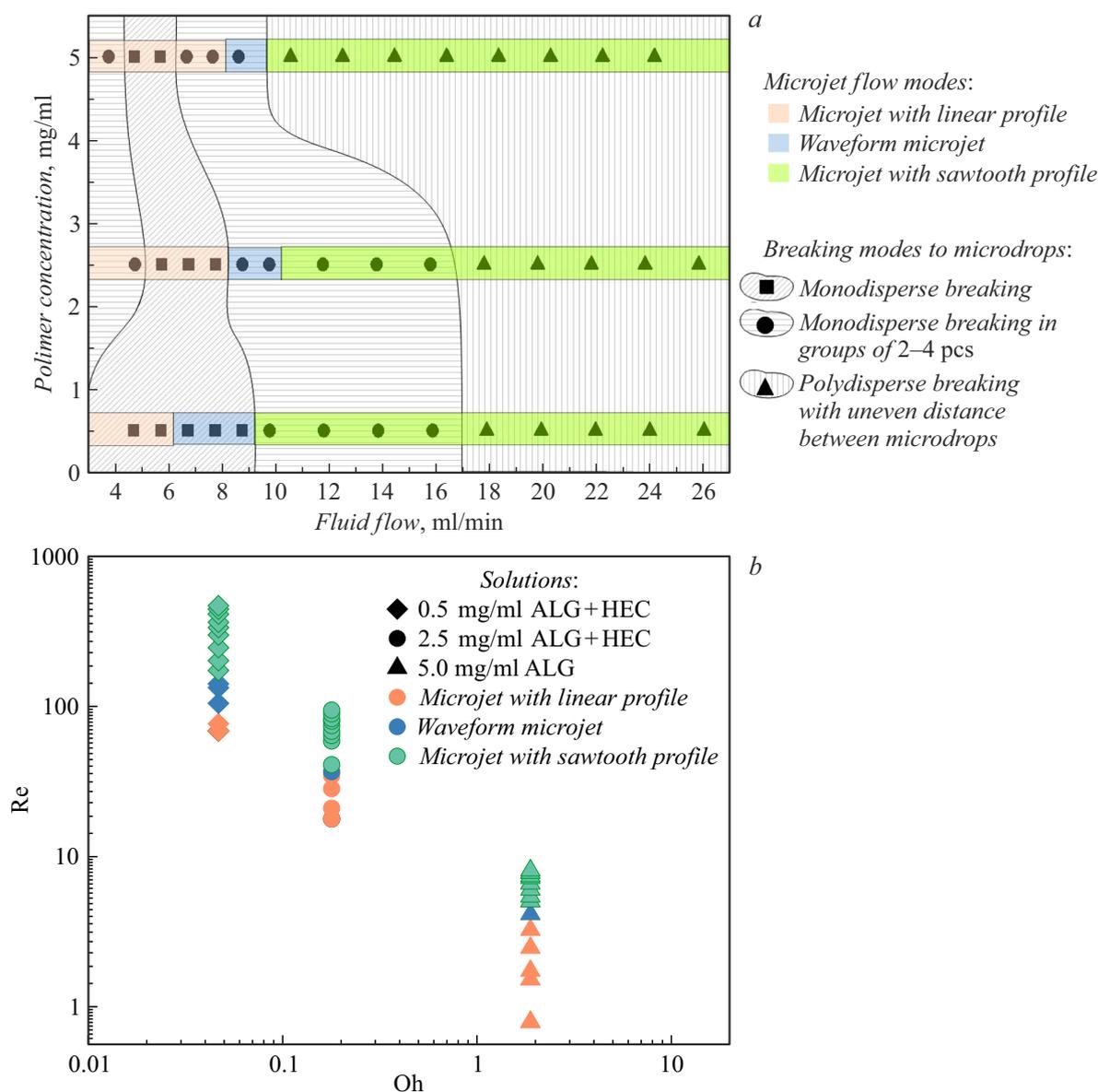


Рис. 8. Карта режимов течения микроструи и дробления на микрокапли с указанием границ переходов между ними, представленная через расходы жидкости и концентрации полимера в растворе (а) и через безразмерные критерии подобия Oh и Re (b); $f = 1000$ Hz.

При анализе режимов течения микроструи (рис. 8, а) установлено, что с увеличением концентрации полимера в растворе микроструи с линейным профилем (без деформации от внешнего возмущения) наблюдаются в более широком диапазоне расходов жидкости. Полученный результат может быть связан с усиливающимся влиянием вязкости жидкости при увеличении концентрации полимера в растворе, а также снижением времен релаксации напряжений в полимерных материалах. Для раствора 5 mg/ml ALG микроструя с линейным профилем наблюдается при расходах жидкости 4–8 ml/min. В то же время для раствора 0.5 mg/ml ALG + HEC микроструи с таким же профилем встречаются только при расходах жидкости 5–6 ml/min. Критические значения времен

релаксации напряжений (для возвращения полимерной системы в равновесное состояние), обуславливающие переход к другому режиму течения микроструи, будут тем ниже, чем выше расход жидкости. В частности, для раствора 0.5 mg/ml ALG + HEC критическое значение τ составляет 0.061 ms при расходе жидкости 6 ml/min, а для растворов 5 mg/ml ALG и 2.5 mg/ml ALG + HEC критические значения τ примерно равны и составляют 0.050 ± 0.003 ms при расходе жидкости 9 ml/min. На рис. 8, а также показаны другие режимы течения микроструи (микроструя с волнообразным профилем, микроструя с пилообразным профилем) и переход между ними, который аналогичным образом связан с расходом жидкости и концентрацией полимера в растворе.

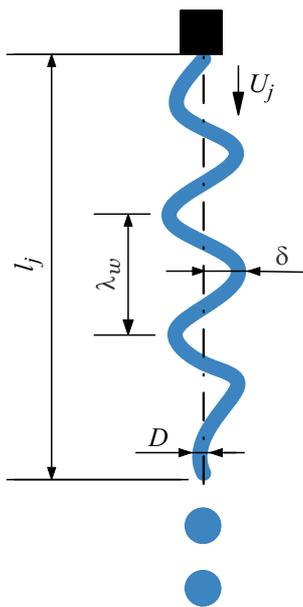


Рис. 9. Схема течения микроструйного ламинарного потока с указанием физических параметров.

Также в целях теоретического обобщения морфологических наблюдений карта режимов течения микроструи построена с использованием безразмерных критериев подобия (рис. 8, *b*) — числа Онезорге, $Oh = \frac{\mu}{\sqrt{\sigma \rho D}}$, и числа Рейнольдса, $Re = \frac{\rho U_j D}{\mu}$, где D — диаметр микроструи, [m]. Видно, что, в общем, при увеличении сил вязкости существенно расширяется область формирования микроструй с линейным профилем. При этом, в частности (для каждой жидкости по-отдельности), рост числа Re приводит к последовательной смене режимов течения микроструй, описанной ранее. Переходы между режимами могут быть качественно описаны степенным законом. Для наглядности физические параметры микроструи, включая анализируемые, представлены на рис. 9.

Вместе с тем при анализе режимов дробления микроструи раствора 0.5 mg/ml ALG на микрокапли выявлено, что монодисперсное разрушение является присущим довольно широкому диапазону расходов жидкости — 5–9 ml/min. Это означает, что существуют условия управляемого монодисперсного дробления на микрокапли, при которых профиль микроструи до капиллярного разрушения может быть и линейным, и волнообразным. Такой результат подтверждает значимость интенсивности вынужденного вибрационного возбуждения, обуславливающего амплитуду и длину волны возмущения микроструи, которые в свою очередь существенно зависят от расхода жидкости. Однако интенсивность сильно связана с природой самой жидкости (молекулярной массой полимера, его концентрацией в растворе и релаксацией напряжений при наличии даже слабых вязкоупругих свойств у материала) [7]. С увеличением концентрации полимера в растворе происходит сужение

диапазона расходов жидкости, характерных для режима монодисперсного дробления на микрокапли. На рис. 8 представлены и другие отличия в определении границ между режимами дробления на микрокапли. Установленные смещения диапазонов расходов жидкости для исследуемых составов детерминируются настройкой баланса между параметрами внешнего возбуждения и природой жидкости, взаимодействующей с этим воздействием. К особенностям неустойчивого поведения, связанного с природой жидкости с вязкоупругими свойствами, также необходимо отнести формирование структур типа „бусины-на-нити“ для раствора 5 mg/ml ALG при расходах жидкости 7–26 ml/min (рис. 3). При росте расхода жидкости жидкостные перемычки становятся крупнее по диаметру и длине, что способствует возникновению полидисперсности микрокапель в потоке. Однако при расходе жидкости 7–9 ml/min коалесценция спутниковых микрокапель происходит сравнительно скоротечно, поэтому режим условно назван монодисперсным, группами по 2–4 основных микрокапли.

При одновременном анализе режимов течения микроструй и дробления на микрокапли важно отметить, что интенсивность вибрационного возбуждения, зависящая от ряда факторов, речь о которых шла выше, возмущает ламинарный поток, обеспечивая разнообразие амплитуд и длин волн в рамках микроструи. Режим монодисперсного дробления на микрокапли может быть установлен при этих заданных характеристиках. В литературе в целях универсализации неустойчивого поведения потока часто используют безразмерные и размерные параметры [7,28] — волновое число k ($k = \pi D \lambda_w^{-1}$ где D — диаметр микроструи, [m], λ_w — длина волны возмущения микроструи, [m] (рис. 9)), безразмерную амплитуду возмущения δ/D или $2\delta/D$, где δ — начальная амплитуда микроструи, возмущенной от внешнего воздействия, [m] (рис. 9), а также длину разрушения микроструи l_j , [m].

В частности, предпринята попытка выявить зависимость длины разрушения микроструи l_j (схематически представлена на рис. 9) от ее скорости U_j . На рис. 10 показано, что рост скорости U_j во всех случаях приводил к увеличению значений l_j при $f = 1000$ Hz. При этом увеличение концентрации полимера в растворе до 5 mg/ml позволяло добиваться при повышенных расходах (15 и 20 ml/min) значительного прироста (до 50%) в значениях l_j , что, скорее всего, связано с более заметным проявлением вклада повышенных значений вязкости и коэффициента поверхностного натяжения для наиболее концентрированного полимерного раствора (см. таблицу) при повышенных значениях U_j .

3.3. Влияние частоты тока внешнего возмущения на капиллярное дробление микроструи

В целях установления роли фактора частоты тока внешнего вибрационного возмущения в формировании паттернов поведения (систем расположения в потоке)

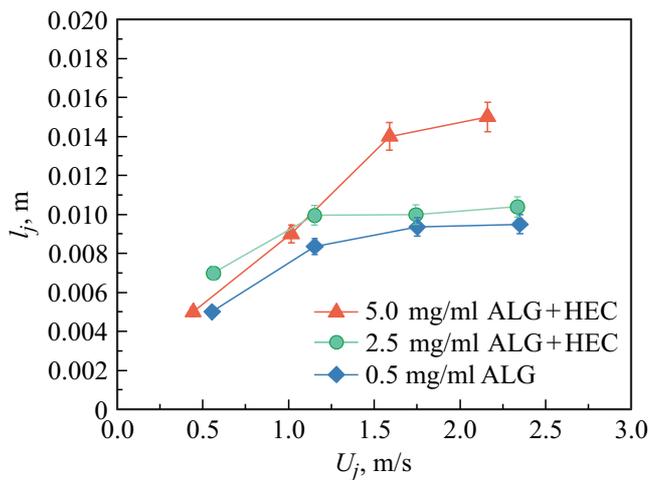


Рис. 10. Зависимость длины разрушения микроструи l_j от скорости микроструи U_j для трех исследуемых жидкостей при расходах жидкости 5, 10, 15 и 20 мл/мин (соответствуют расположению точек в рамках кривых слева направо) и $f = 1000$ Hz.

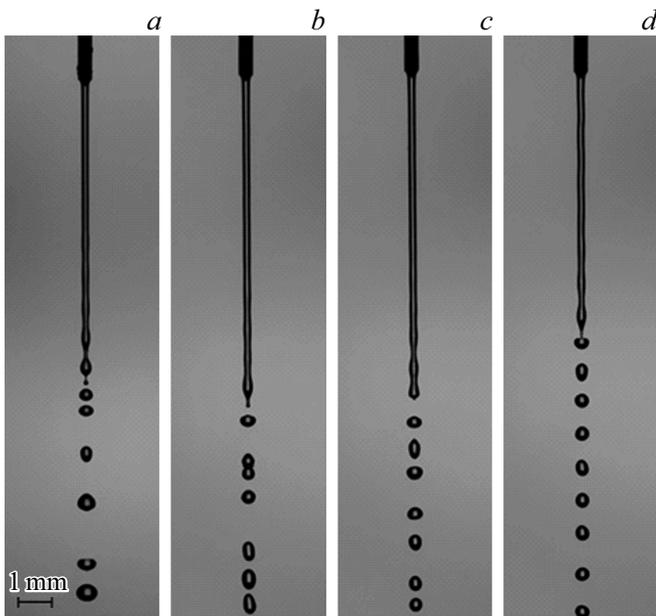


Рис. 11. Визуализация разрушения микроструи полимерного раствора 0.5 мг/мл ALG + HEC при расходе жидкости 6 мл/мин и значениях частоты тока внешнего вибрационного возбуждения, f : 0 (a), 400 (b), 800 (c), $f = 1200$ Hz (d).

основных и спутниковых микрокапель исследовано капиллярное разрушение всех тестируемых растворов при расходе жидкости 6 мл/мин и значениях f , равных 0, 400, 800, 1200 Hz. На рис. 11 представлены результаты такого исследования для раствора 0.5 мг/мл ALG + HEC.

В первую очередь, при активации пьезоактюатора отмечается явное увеличение длины разрушения микроструи l_j на 7% по сравнению со случаем ее естественной неустойчивости при отсутствии внешнего воздействия. Однако при этом средние значения l_j уменьшаются с

ростом значений f (при $f = 800$ Hz l_j снижается на 3–4% по сравнению с $f = 400$ Hz, а при $f = 1200$ Hz l_j снижается еще на 17%), как и диаметр микрокапель d , отделяющихся от микроструи (рис. 11). При $f = 400$ Hz микроструя начинает разрушаться в режиме „группами“ с протяженными пространствами вне групп микрокапель (рис. 11, b). Когда $f = 800$ Hz, явление группирования капель уже не так заметно, поскольку расстояние между каплями стремится к равноудаленному (рис. 11, c). Эти условия можно обозначить как переходные, потому что при $f = 1200$ Hz достигается устойчивое монодисперное дробление микроструи. Формируемые микрокапли имеют гомогенные формы (близкую к сферической) и близкий размер, а также они равноудалены друг от друга в потоке с незначительными и редкими отклонениями по крайней мере на дистанции в $15d$ – $20d$ относительно области разрушения микроструи (рис. 11, d). При $f \geq 800$ Hz изменения значений l_j и d становятся менее заметными и прогнозируемыми при увеличении концентрации полимера в растворе. Последнее связано с фактором формирования жидкостных перемычек, которые, как указывалось ранее, замедляют и разрегулируют капиллярное разрушение микроструи.

Варьирование значений f при постоянстве других параметров системы представляет эффективный и наиболее хорошо прогнозирующий инструмент настройки паттернов поведения микрокапель после капиллярного разрушения микроструи, их однородности в отношении формы (сферической) и физического размера, а также определения значений l_j . Надежность прогнозирования обусловлена тем, что исследуемые жидкости — разбавленные полимерные растворы показали причастность к описанным выше паттернам при одних и тех же значениях f с сохранением тенденций в отношении геометрической формы и физического размера, а также значений l_j .

Заключение

Установлена причина формирования системы сгруппированного расположения микрокапель в потоке после капиллярного разрушения микроструи. Показано, что структуры типа „бусины-на-нити“ для раствора 5 мг/мл ALG дестабилизируют дробление микроструи. Зарегистрированы случаи отсутствия возникновения спутниковых микрокапель из жидкостных нитей между основными микрокаплями. Выделены три режима течения микроструи и три режима дробления ламинарного микроструйного потока на микрокапли. Показано влияние вязкости и коэффициента поверхностного натяжения жидкости на изменение длины разрушения микроструи при повышенных расходах жидкости (15 и 20 мл/мин). Определены условия управляемого монодисперного дробления на микрокапли, при которых профиль микроструи до капиллярного разрушения может быть и линейным, и волнообразным. Продемонстрирована значимость на-

стройки оптимального баланса между молекулярной массой полимера в растворе, интенсивностью внешнего возмущения и временем релаксации напряжений в полимерных вязкоупругих материалах в достижении монодисперсного разрушения микроструи с равноудаленным расположением основных микрокапель в потоке. Выявлено, что настройка значений частоты тока внешнего вибрационного возмущения при постоянстве других параметров системы представляет наиболее надежный инструмент прогнозирования паттернов поведения микрокапель после капиллярного разрушения микроструи, их однородности в отношении сферической формы и физического размера, а также значений длины разрушения микроструи.

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-29-20109, <https://rscf.ru/project/22-29-20109/> и средств Администрации Томской области.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] H. Wijshoff. *Phys. Rep.*, **491**, 77–177 (2010). DOI: 10.1016/j.physrep.2010.03.003
- [2] D. Serp, E. Cantana, C. Heinzen, U. Von Stockar, I.W. Marison. *Biotechnol. Bioeng.*, **70**, 41–53 (2000). DOI: doi.org/10.1002/1097-0290(20001005)
- [3] C.W. Visser, T. Kamperman, P.L. Karbaat, D. Lohse, M. Karperien. *Sci. Adv. American Association for the Advancement of Science*, **4** (2018). DOI: 10.1126/sciadv.aao1175
- [4] M. Neukötter, S. Jesinghausen, H.-J. Schmid. *Rheol. Acta*, **61**, 499–521 (2022). DOI: 10.1007/s00397-022-01339-y
- [5] F. Del Giudice, S.J. Haward, A.Q. Shen. *J. Rheol. (N.Y.N.Y.)*, **61**, 327–337 (2017). DOI: 10.1122/1.4975933
- [6] D. Baumgartner, G. Brenn, C. Planchette. *Phys. Rev. Fluids*, **5**, 103602 (2020). DOI: 10.1103/PhysRevFluids.5.103602
- [7] Y. Christanti, L.M. Walker. *J. Rheol. (N.Y.N.Y.)*, **46**, 733–748 (2002). DOI: 10.1122/1.1463418
- [8] N. Blanken, M.S. Saleem, M.-J. Thoraval, C. Antonini. *Curr. Opin. Colloid Interface Sci.*, **51**, 101389 (2021). DOI: 10.1016/j.cocis.2020.09.002
- [9] A.E. Ashikhmin, N.A. Khomutov, M.V. Piskunov, V.A. Yanovsky. *Appl. Sci.*, **10** (2020). DOI: 10.3390/app10020685
- [10] M. Piskunov, A. Semyonova, N. Khomutov, A. Ashikhmin, V. Yanovsky. *Phys. Fluids*, **33**, 83309 (2021).
- [11] M. Piskunov, A. Semyonova, N. Khomutov, A. Ashikhmin, V. Yanovsky. *Int. J. Heat Mass Transf.*, **185**, 122442 (2022). DOI: 10.1063/5.0059079
- [12] J. Eggers. *Rev. Mod. Phys.*, **69**, 865–930 (1997). DOI: 10.1103/RevModPhys.69.865
- [13] A.H. Lefebvre, V.G. McDonell. *Atomization and Sprays*, **2**, 300 (2017). DOI: 10.1201/9781315120911
- [14] W.T. Pimbley, H.C. Lee. *IBM J. Res. Dev.*, **21**, 21–30 (1977). DOI: 10.1147/rd.211.0021
- [15] J.H. Hilbing, S.D. Heister. *Phys. Fluids*, **8**, 1574–1581 (1996). DOI: 10.1063/1.868931
- [16] A.U. Chen, O.A. Basaran. *Phys. Fluids*, **14**, L1–L4 (2002). DOI: 10.1063/1.1427441
- [17] U. Prüße, J. Dalluhn, J. Breford, K.-D. Vorlop. *Chem. Eng. Technol.*, **23**, 1105–1110 (2000). DOI: 10.1002/1521-4125(200012)23:12
- [18] T. Kamperman, V. Trikalitis, M. Karperien, C.-W. Visser, J. Leijten. *ACS Appl. Mater. Interfac.*, **10**, 23433–23438 (2018). DOI: 10.1021/acsami.8b05227
- [19] V. Nedović, V. Manojlović, U. Pruesse, B. Bugarski, J. Djonlagic, K. Vorlop. *Chem. Ind. Chem. Eng. Q.*, **12**, 53–57 (2006). DOI: 10.2298/CICEQ0601053N
- [20] D. Baumgartner, W. Bernard, B. Weigand, G. Lamanna, G. Brenn, C. Planchette. *J. Fluid Mech.*, **885** (2020). DOI: 10.1017/jfm.2019.967
- [21] D. Baumgartner, G. Brenn, C. Planchette. *Int. J. Multiph. Flow.*, **150**, 104012 (2022). DOI: 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2022.104012
- [22] D. Baumgartner, G. Brenn, C. Planchette. *J. Fluid Mech.*, **937** (2022). DOI: 10.1017/jfm.2022.107
- [23] C. Liu, T. Jin, W. Liu, W. Hao, L. Yang, L. Zheng. *LWT*, **148**, 111770 (2021). DOI: 10.1016/j.lwt.2021.111770
- [24] D.W. Bousfield, R. Keunings, G. Marrucci, M.M. Denn. *J. Nonnewton. Fluid Mech.*, **21**, 79–97 (1986). DOI: 10.1016/0377-0257(86)80064-7
- [25] J. Li, M.A. Fontelos. *Phys. Fluids*, **15**, 922–937 (2003). DOI: 10.1063/1.1556291
- [26] C. Clasen, J. Eggers, M. Fontelos, J. Li, G. McKinley. *J. Fluid Mech.*, **556**, 283–308 (2006). DOI: 10.1017/S0022112006009633
- [27] R. Sattler, S. Gier, J. Eggers, C. Wagner. *Phys. Fluids*, **24**, 23101 (2012). DOI: 10.1063/1.3684750
- [28] R.P. Mun, J.A. Byars, D.V. Boger. *J. Nonnewton. Fluid Mech.*, **74**, 285–297 (1998). DOI: 10.1016/S0377-0257(97)00074-8