

液滴热毛细迁移问题的研究进展*

高 鹏 尹兆华[†] 胡文瑞

中国科学院力学研究所, 国家微重力实验室, 北京 100190

摘 要 液滴或气泡的迁移现象无论是在流体力学的基础研究中, 还是在材料加工, 化学工程等实际应用中都是一个很重要的课题. 在微重力环境中, 如果液滴或气泡所在的母液中外加一个温度场, 则液滴或气泡就会由于表面张力分布的不均匀而发生迁移运动. 这种运动被称为 Marangoni 迁移或热毛细迁移运动. 综述了液滴或气泡的热毛细迁移问题历史研究中理论分析, 数值模拟以及实验方面的主要结果, 阐述了该问题的研究发展过程. 目前液滴迁移问题的研究, 理论分析解还只限于线性及弱非线性的定常问题, 数值模拟工作已经得到了在热对流作用较小时液滴的非定常迁移过程, 对于热对流影响很大的情况 (Marangoni 数大于 100) 则尚未得到与实验中观测到的相一致的理论结果. 在总结前人研究的基础上, 给出了热对流作用较大时液滴热毛细迁移非定常问题的最新的数值模拟结果, 并对该问题在此情况下产生的新变化给予了分析. 最后, 分析了当前研究中所存在的问题并进一步展望液滴热毛细迁移问题未来的发展方向.

关键词 液滴热毛细迁移, 微重力, 热对流作用

1 引言

液滴和气泡的运动问题是生活中很常见的物理现象, 如水波中的气泡, 沸水中的蒸汽泡, 油瓶中的油滴, 下落的雨滴等等, 这些液滴或气泡的出现都是由某一种液体或气体存在于另外一种介质 (母液) 中而形成的, 当液滴或气泡受到某种外力作用时它们就会在母液中发生运动. 在工业用途中, 液滴和气泡也是普遍存在的, 例如材料制备, 晶体生长, 工业加工, 化学, 制药等许多应用中都会存在液滴和气泡运动问题. 在重力环境下, 处于不混溶的母液中的液滴或气泡, 由于和母液的密度不同, 在浮力作用下就会发生迁移运动. 浮力诱导的气泡或液滴的迁移运动是流体力学中的一个经典问题, 许多教科书和专著中都有过详细的讨论. 随着航天事业蓬勃发展, 特别是空间实验的逐渐增多, 微重力环境下的力学机理研究也就变得重要起来. 本文研究的就是这种在微重力环境下的液滴迁移运动问题. 在微重力环境下, 重力作用忽略不计, 浮力效应消失, 液滴在母液中的迁移运动在加上外场的时候就可能发生. 在实际应用中会采

用外加温度场, 电磁场 (Im 和 Kang^[1]), 或者依靠一些泳动现象如电泳、热泳 (Aderson^[2]) 等方法来诱导液滴运动, 其中研究最多的就是界面上外加温度梯度或浓度梯度产生表面张力梯度, 诱导液滴发生迁移运动. 在微重力条件下, 由温度梯度引起的液滴迁移运动问题就是热毛细作用的问题, 在地面重力场作用下, 热毛细作用被掩盖了, 只能存在于特征尺度很小的体系中, 而且与重力作用是耦合在一起的. 只有在微重力的环境下才能很好的研究这种热毛细运动问题的物理规律.

在液滴存在的母液中外加一个稳定的温度梯度, 由于液滴的界面张力会随着温度的不同而变化, 大多数情况下液体的界面张力会随着温度的升高而减小, 这种界面张力不均匀就会在液滴界面上形成受力不均匀从而驱动液滴界面两侧附近的流体发生流动. 液滴内部的流体在流动过程中逐渐形成对流胞元, 液滴外则形成绕流. 液滴在热毛细力的作用下, 就会由低温端向高温端迁移. 我们称这种由于温度梯度导致的迁移运动为热毛细迁移运动 (也称 Marangoni 迁移), 如图 1 所示. 从实验拍到的照片中也可以清晰

收稿日期: 2007-04-19, 修回日期: 2007-11-28

* 国家自然科学基金 (G10502054, G10432060) 和中国科学院知识创新工程领域前沿资助项目

[†] E-mail: zhaohua.yin@imech.ac.cn

的看到液滴内部的对流胞元的流动现象, 如图 2. 不过实验中外界影响可能会干扰到液滴内部的流动, 使得对流胞元并不完全对称. 液滴的热毛细迁移运动研

究是基于一种新的驱动机制的物理现象研究, 在这个领域还有很多新问题需要去探索, 热毛细迁移问题的解决也将有助于研究其他的热毛细作用问题.

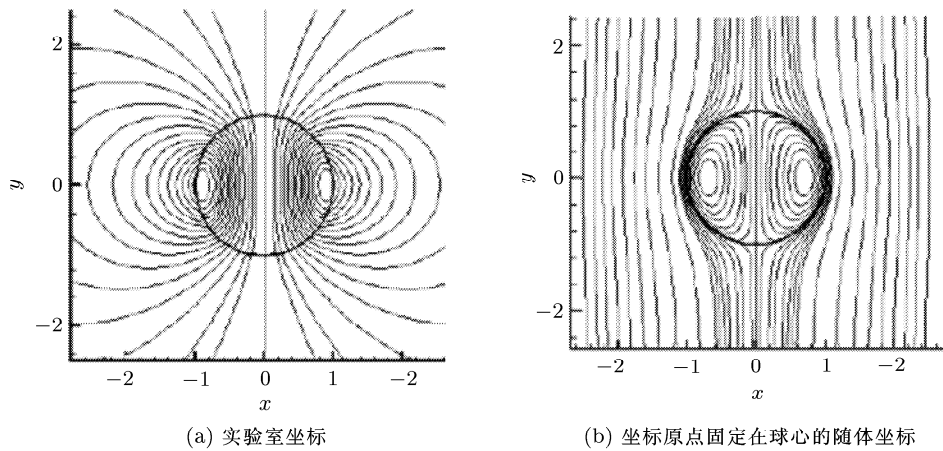


图 1 液滴 Marangoni 迁移问题线性理论解的流场图

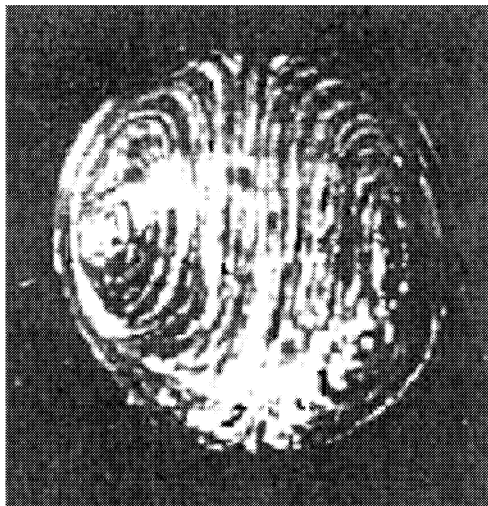


图 2 液滴 Marangoni 迁移问题液滴内部对流胞元的实验照片^[3]

微重力环境中的液滴和气泡动力学不仅有着重要的理论意义, 而且它也与微重力环境中的许多应用问题密切相关. 例如材料制备时的两相分离过程, 很容易存在一种熔体在另一种熔体中不相混容的状态. 重力环境下可以依靠密度不同进行分离, 而微重力条件下就只有靠其他方法, 液滴热毛细迁移就是一种很好的方法. 随着空间技术的发展, 空间材料的无模铸造工艺例如玻璃, 已经被认为是在生成纯度高的材料很有发展潜力的技术, 但在制作过程中, 气泡的产生总是不可避免的, 热毛细迁移技术的应用就可以使气泡从熔体中排出 (Nielson 和 Weinberg^[4], Uhlmann^[5]). 另外, 其他方面, 如液体火箭的燃烧系

统, 空间环境的冷却系统 (Ostrach^[6]), 各种实验的化学过程, 生物领域等等, 许多空间技术应用方面都会涉及到液滴或气泡的热毛细迁移问题.

2 理论研究

液滴热毛细迁移问题中主要用到的典型无量纲参数有 Reynolds 数 (Re), Marangoni 数 (Ma), 动力学黏性系数比 (α), 热扩散系数比 (β) 等, 定义如下

$$Re = \frac{RU\rho_1}{\mu_1} \quad (1)$$

$$Ma = \frac{RU}{\kappa_1} \quad (2)$$

$$\alpha = \mu_2/\mu_1 \quad (3)$$

$$\beta = \kappa_2/\kappa_1 \quad (4)$$

这里 R 代表液滴的半径, ρ 表示密度, μ 代表动力学黏性系数, κ 为热扩散系数. 在本文中所有的下标 1 都代表母液的物理量, 而下标 2 则都代表液滴的物理量. 上面的参考速度 U 的定义是建立在热毛细力与黏性力的平衡的基础上, 定义如下

$$U = |\sigma_T| |\nabla T_\infty| R / \mu_1 \quad (5)$$

这里, σ_T 表示界面张力关于温度的梯度, ∇T_∞ 代表外加温度场的温度梯度. 整个问题的研究都是基于这些无量纲参数的变化而展开的.

由表面张力梯度驱动的热毛细对流问题早在 19 世纪就被 Marangoni 研究过, 也因此又被称为 Marangoni 对流问题, 1939 年 Hershey^[7] 指出在气

液表面上外加温度梯度后产生的热毛细对流存在动力学上稳定的状态. 液滴和气泡的热毛细迁移问题最早的研究始于 1959 年, Young, Goldstein 和 Block^[8]首次建立了该问题的线性理论模型, 并在忽略 2 阶项和非定常项的基础上, 推导出了液滴和气泡热毛细迁移运动的 Stokes 问题的分析解 (简称为 YGB 解), 问题的基本方程组为

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (6)$$

$$\mu \nabla^2 \mathbf{u} = \nabla p \quad (7)$$

$$\nabla^2 T = 0 \quad (8)$$

方程中 \mathbf{u} 代表速度矢量, p 为压力, T 是温度. 假设基态为均匀流场和线性温度分布场, 扰动态的液滴内场和外场都可以由线性方程组求出分析解. 对于球坐标轴对称问题 $(r, \theta, 0)$, 分析解可以表达为

$$u_1 = [(a_1/\mu_1)(r^{-1} - R^2 r^{-3}) + v_\infty(1 - R^3 r^{-3})] \cos \theta \quad (9)$$

$$v_1 = -[(a_1/2\mu_1)(r^{-1} + R^2 r^{-3}) + v_\infty(1 + \frac{1}{2}R^3 r^{-3})] \sin \theta \quad (10)$$

$$p_1 = (a_1/r^2) \cos \theta \quad (11)$$

$$T_1 = T_0 + \nabla T_\infty(r + b_1/r^2) \cos \theta \quad (12)$$

$$u_2 = a_2/(10\mu_2)(r^2 - R^2) \cos \theta \quad (13)$$

$$v_2 = -a_2/(10\mu_2)(2r^2 - R^2) \sin \theta \quad (14)$$

$$p_2 = a_2 r \cos \theta + a_0 \quad (15)$$

$$T_2 = T_0 + \nabla T_\infty b_2 r \cos \theta \quad (16)$$

其中, 常数 $a_0, a_1, b_1, a_2, b_2, T_0$ 都由边界条件确定, ∇T_∞ 为外加温度场的温度梯度, v_∞ 为液滴或气泡最终的迁移速度, 而 $(u, v, 0)$ 为球坐标的速度分量. 在上述解中已经考虑到了 $r = 0$ 处的正则条件及 $r \rightarrow \infty$ 时的渐进条件:

$$\begin{aligned} \mathbf{u} &\rightarrow (-v_\infty \cos \theta, v_\infty \sin \theta, 0), \quad p \rightarrow p_\infty \\ T &\rightarrow T_0 + \nabla T_\infty r \cos \theta, \quad |r| \rightarrow \infty \end{aligned} \quad (17)$$

在液滴和气泡表面还要满足径向速度为零, 切向速度相等, 切向和径向应力连续, 温度连续, 热流连续的条件, 即

$$u_1(R, \theta) = u_2(R, \theta) = 0 \quad (18)$$

$$v_1(R, \theta) = v_2(R, \theta) \quad (19)$$

$$\left[\mu_2 \left(\frac{\partial v_2}{\partial r} - \frac{v_2}{r} \right) - \mu_1 \left(\frac{\partial v_1}{\partial r} - \frac{v_1}{r} \right) - \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma}{\partial \theta} \right]_{r=R} = 0 \quad (20)$$

$$\left[p_2 - p_1 + 2\mu_1 \frac{\partial u_1}{\partial r} - 2\mu_2 \frac{\partial u_2}{\partial r} - \frac{2\sigma}{R} \right]_{r=R} = 0 \quad (21)$$

$$T_1(R, \theta) = T_2(R, \theta) \quad (22)$$

$$\left[k_1 \frac{\partial T_1}{\partial r} - k_2 \frac{\partial T_2}{\partial r} \right]_{r=R} = 0 \quad (23)$$

这里 k 表示热传导系数. 由此导出液滴的 Marangoni 迁移速度, 通常把它记为

$$V_{YGB} = \frac{2U}{(2 + 3\alpha)(2 + \lambda)} \quad (24)$$

其中 $\lambda = k_2/k_1$, α 及 U 的定义如式 (3), 式 (5) 所示, 如果是气泡迁移问题, 则认为 $\alpha, \beta = 0$ 即可.

理论上当液滴迁移运动所受到的合力为零时, 它就能达到一个均匀稳定的迁移状态, 但实际上液滴在迁移过程中, 由于液体中各种的物性参数尤其是黏性系数随温度变化很大, 周围条件的不断改变使得液滴迁移运动最终不一定能达到稳定速度. Subramanian^[9] 就此问题提出了一个准稳态假设, 即如果温度场和速度场重新建立稳定状态的时间尺度相对于由于液滴运动周围温度改变而造成物性参数变化的时间尺度是非常小的话, 就可以称此状态为准稳态. 如果液滴迁移系统符合准稳态假设, 则仍然可以认为液滴最终可以达到一个稳定状态, 关于液滴迁移的理论和数值模拟的研究大都是建立在这个假设的基础上的, 在分析过程中所有的物性参数都以常数来表示, 不随温度而变化.

在 YGB 线性理论解出现之后, 研究者们便开始关注于定常问题中非线性项对于迁移问题的影响. 在非线性问题中, 动量守恒方程中的惯性项和能量方程中的对流项在迁移过程中的影响就必须计入, 同时对于气泡问题还可能会发生较大的变形, 这些都会使问题变得复杂化. 由于研究的是定常问题, 可以采用随体坐标来处理 (如图 3), 求解时只讨论达到稳定迁移速度后的状态, 这个时候液滴周围的速度场就可以看成定常不变的, 但是其温度场并不是定常的, 由于温度梯度的存在, 在迁移过程中液滴周围的温度始终是增加的, 不过由于问题中温度梯度为常数, 这里很容易通过变换, 得到定常的温度场. 引入无量纲量如下

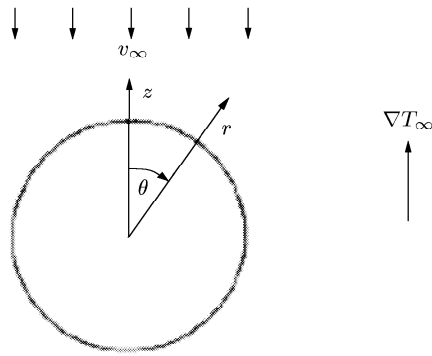


图 3 液滴 Marangoni 迁移问题随体坐标模型示意图

$$\begin{aligned} \bar{u} &= u/U, \quad \bar{r} = r/R, \quad \bar{t} = t/\left(\frac{R}{U}\right) \\ \bar{p} &= p/(\rho_1 U^2), \quad \bar{T} = T/(\nabla T_\infty R) \end{aligned} \quad (25)$$

由此得到非线性无量纲控制方程组为

$$\nabla \cdot \bar{\mathbf{u}} = 0 \quad (26)$$

$$\bar{\mathbf{u}} \cdot \nabla \bar{\mathbf{u}} = -\nabla \bar{p} + \frac{1}{Re} \nabla^2 \bar{\mathbf{u}} \quad (27)$$

$$\frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{t}} + \bar{\mathbf{u}} \cdot \nabla \bar{T} = \frac{1}{Ma} \nabla^2 \bar{T} \quad (28)$$

令 $\bar{v}_\infty = v_\infty/U$, 通过变换 $\bar{T}' = \bar{T} - \bar{v}_\infty \bar{t}$, 就可以得到定常的能量方程

$$\bar{v}_\infty + \bar{\mathbf{u}} \cdot \nabla \bar{T}' = \frac{1}{Ma} \nabla^2 \bar{T}' \quad (29)$$

过去的研究中, 大都采用这个变换方法来研究定常问题. 当方程中的 $Re \ll 1$, $Ma \ll 1$ 时, 上述方程就又退化成 Stokes 问题. 在用分析方法求解非线性问题时, 多是需要对问题进行简化, 如只考虑惯性项的影响而忽略热对流的影响 ($Re \gg 1$, $Ma \ll 1$), 此时问题简化为无黏情况, 流场可近似为位势流的模型来处理, 或是只考虑热对流而忽略惯性项 ($Re \ll 1$, $Ma \gg 1$) 即流场简化为 Stokes 问题, 以及其他一些极限情况.

非线性问题的研究始于 1975 年, Bratukhin^[10] 利用摄动的方法在全场对 Re 渐进展开得到关于 Re 的 1 阶近似解. Thompson 等^[11] 更是给出了关于 Re 的 2 阶及更高阶结果, 但是他发现该结果不能满足无穷远处的边界条件, 也就是 Whitehead 佯谬问题. Subramanian^[9] 利用匹配渐进展开的方法, 利用满足不同边界条件的内解和外解在界面处匹配, 成功地解决了这个问题, 他首先分析了气泡迁移问题, 令 $Re=0$, 将 Ma 作为小系数摄动展开, 发现了

迁移速度的修正项在 $O(Ma)$ 为 0, 在 $O(Ma^2)$ 才出现非零的修正项. 在分析中他发现, 热对流项对于气泡迁移速度会起到阻碍作用. Subramanian^[12] 采用同样的方法, 推展到液滴迁移问题, 发现迁移速度在 $O(Ma^2)$ 的修正项在某些参数范围内可能为正值, 即热对流项对于液滴迁移问题的影响与物性参数有关. Merritt^[13] 在他的研究中将问题结果推广到 $O(Ma^4)$. 这几个研究都发现了迁移速度在 $O(Ma^2)$ 时会产生第 1 次修正, 但在他们的研究中都是小 Ma 问题, 并且没有涉及到惯性影响.

Crespo 和 Manuel^[14] 开始真正引入惯性作用, 发现在气泡迁移问题中, 由于黏性效应与热效应平衡, 当忽略热对流影响时, 气泡迁移也可以等效于在无黏性流体中运动. Balasubramaniam 和 Chai^[15] 发展了他们的思想并推广到液滴迁移问题, 认为当忽略热对流作用时液滴迁移问题都可以采用母液为位势流, 液滴内部可以用 Hill 球涡的模型来近似, 这为以后的大 Re 分析解的研究提供了很好的思路. 同时他们还讨论了小惯性的时候液滴形状的变化. Haj-Hariri 等^[16] 同样也是研究了这种情况, 他们采用了洛伦兹倒数定理 (Lorentz reciprocal theorem), 分析了气泡和液滴形状变形导致的温度场以及迁移速度的修正, 并且指出在这种情况下, 密度比会对迁移速度的大小产生影响.

大 Ma 问题的理论研究始于 Crespo 和 Jiménez-Fernández^[17,18], 他们用匹配渐进展开方法分析 $Re \geq 1$ 并且 $Ma \geq 1$ 时的气泡迁移问题, 发现了气泡周围同时存在热边界层和黏性边界层, 并且得到了不同于 YGB 结果的气泡迁移速度. Balasubramaniam 和 Subramanian^[19] 分析了大 Ma 时, $Re \rightarrow 0$, $Re \rightarrow \infty$ 两种极限情况下的气泡迁移情况, 修正了文 [17, 18] 中的结果, 给出了 $Re \rightarrow \infty$ 时 (即流场为位势流) 气泡迁移速度高阶修正解的表达式

$$V = \left(\frac{1}{3} - \frac{\ln 3}{8}\right) - 0.1369\epsilon \ln \epsilon + 0.6578\epsilon \quad (30)$$

其中 $\epsilon = 1/\sqrt{Ma}$. 这个结果解释了 Balasubramaniam 和 Lavery^[20] 的数值模拟结果中 $Ma=1000$ 时气泡迁移速度随 Re 而增加的情况, 部分 ($75 \leq Ma \leq 200$) 符合 Shankar 和 Subramanian^[21] 的气泡迁移速度随 Ma 指数下降直到 0 的数值解. Crespo 等^[22] 分析了 $Re \gg 1$ 时, 任意 Ma 的气泡迁移问题, 得到的结果与文 [19] 相符, 同时他们还给出了这种情况下气泡迁移速度随 Ma 变化的完整曲线, 发现迁移速度会随着 Ma 的增加而一直下降. Balasubrama-

niam 和 Subramanian^[23] 分析了大 Re , 大 Ma 时的液滴迁移问题, 指出由于当 Ma 很大时热对流作用占据主导, 液滴界面内外都会存在热边界层, 液滴内部的温度会远远低于外部母液的温度. 他们同时给出了这种情况下迁移速度的表达式

$$V = \frac{4h(\delta)Ma}{\beta(2+3\alpha)^2(1+\delta)^2} \quad (31)$$

其中 $\delta = \sqrt{\beta/\lambda}$, 而 $h(\delta)$ 是随着 δ 单调增加的函数. 从该式中可以推出在 Re, Ma 都很大的情况时无量纲迁移速度会随着 Ma 的增大而增大, 该结果与 Ma 等^[24] 的数值模拟结果在大 Ma 数时是一致的, 但与实验中所观察到的现象是相反的.

以上的研究都是基于定常问题出发的, 定常解分析的前提就是液滴或气泡在迁移过程中可以达到稳定的迁移速度, 如果想完全与实验中的情况对比就需要迁移问题系统必须满足准稳态的假设, 在这里就会有它的局限性, 因为从实验中看来, 很多时候液滴最终是没有达到定常迁移速度的, 当然这里也有实验时间或者说迁移距离不够的原因, 但也有一部分原因就是物性参数受温度影响过大而使得液滴迁移无法达到稳定状态. 另外, 在研究大 Ma 液滴迁移问题时, 液滴内部及附近的温度场的变化是相当大的, 对这个温度场变化过程的分析也可以说是解决大 Ma 液滴迁移问题的关键. 因此为了更清楚的解释 Marangoni 迁移问题, 就必须对这个问题进行非定常的研究. 分析解处理非定常问题比较困难, 目前只有 Dill 和 Balasubramanian^[25] 利用 Laplace 变换分析方法, 给出了非定常 Stokes 问题的渐进解在 $t \leq 1$ 以及 $t \rightarrow \infty$ 两个极限时间段的迁移速度的表达式, 更复杂的非定常问题目前还只能通过数值模拟的方法来解决.

3 数值模拟研究

随着计算机的发展, 数值模拟计算已经进入了各个方向各个领域, 气泡和液滴的热毛细迁移问题是在 80 年代末期开始了这方面的研究. 1988 年, Szymczyk 和 Siekmann^[26] 采用涡流函数法首次对气泡迁移问题进行数值模拟的研究. Shankar 和 Subramanian^[21] 对能量方程采用有限差分方法, 而速度场仍然是采用 Stokes 方程的分析解, 从而得到了气泡无量纲迁移, 迁移速度会随 Ma 的增大而减小的结论. Merritt 和 Subramanian^[27] 采用同样的方法研究浮力、热毛细共同作用下的气泡迁移运动, Ma 的范围为 0~5, 给出了重力在迁移中作用以及热

对流的影响. Balasubramanian 和 Lavery^[20] 的研究中能量方程和动量方程均用有限差分的方法, 其中 Re 的范围是 0.1~2000, Ma 的范围是 0~1000. 他们在研究中发现, 气泡迁移运动中 Ma 的影响远大于 Re , 在固定的 Re 时迁移速度会随 Ma 的增大而显著减小, 而在固定的 Ma 时迁移速度只会随 Re 增大而轻微增大. Chen 和 Lee^[28] 考虑了气泡变形的问题, 提出气泡的小变形就可以导致迁移速度较大的降低. Welch^[29] 既考虑惯性力, 又考虑变形, 指出由于气泡在向高温处迁移时, 相应的表面张力的减小会导致变形连续增加, 所以真的稳定态的解是不存在的.

液滴的热毛细迁移问题的数值模拟在近年来也开展了很多研究, 随着计算方法的发展, 研究的情况也越来越复杂. Ehmann 等^[30] 最先对液滴迁移问题进行数值模拟研究, 发现在大 Ma 时迁移速度并不一定会小于 YGB 速度, 在某些情况下它会大于 YGB 速度, 对此现象研究者未给出合理的解释. Ma 等^[24] 采用定常模型随体坐标对液滴迁移问题进行数值模拟, 模拟对象就是文 [31] 中的两种液体 (母液: 5cs 硅油, 液滴: Fluorinert FC-75 氟液), 他们发现与实验结果不同, 液滴的无量纲迁移速度初始时随 Ma 增长而减小, 在 Ma 为 50~200 范围会随 Ma 增长而增长, 增长部分的曲线正好与文 [23] 的渐进解比较吻合. 上面两种数值模拟情况都是采用随体坐标研究的定常问题, 非定常过程的数值模拟就需要涉及到运动界面的问题. 近二三十年, 运动界面的数值模拟技术也有了很大的发展, 由初期的在固定网格下捕捉界面的 VOF 方法到后来发展出的水平集 (level set) 方法, 界面追踪 (front-tracking) 方法以及相场 (phase field) 方法等等, 这给液滴迁移非定常问题的研究带来了很大的便利. Haj-Hariri 等^[32] 利用水平集方法进行三维的数值模拟, 发现由于液滴前端包围的等温线降低了表面温度梯度, 从而使热对流作用阻碍液滴的迁移. 同时对于变形情况, 他们分析发现惯性作用对于气泡迁移的影响要大于液滴. Geng 等^[33] 利用轴对称模型界面追踪方法模拟了文 [34] 的结果, 得到了比实验结果大很多的液滴迁移速度. Wang 等^[35] 用三维有限元及界面追踪方法也对该实验进行了数值模拟, 得到了与实验数据更加接近的结果. Bassano 和 Castagnolo^[36] 在对甲醇液滴在环乙胺溶液中的 Marangoni 迁移的数值模拟中, 利用水平集方法得到了大 Re , 大 Ma 液滴迁移问题的非定常结果, 发现在这种情况下液滴的迁移速度会在迁移过程中出现起伏的现象, 但在模型中两种液体是互溶的, 同时作者也没有深入分析这种速度变化情况出现的原因, 以及热对流在迁移运动中所起的作用. Nas 等^[37,38] 采用有限差分 and 界面追踪

方法对于二维和三维的情况先后研究了双滴和多滴的相互作用的问题. 在他们的研究参数范围内 ($Ma < 100, Ca < 0.05$), 其中 Ca 为 Capillary 数^[37], 液滴的变形很小, 但液滴间相互作用比较明显.

近来我们采用有限差分 and 界面追踪方法对大 Ma 的非定常轴对称液滴迁移问题进行了数值模拟^[39], 发现在热对流影响较大的时候, 液滴的迁移速度在达到稳定状态之前会有较大的起伏变化, 如图 4 所示. 通过分析发现, 造成液滴迁移速度变化的原因

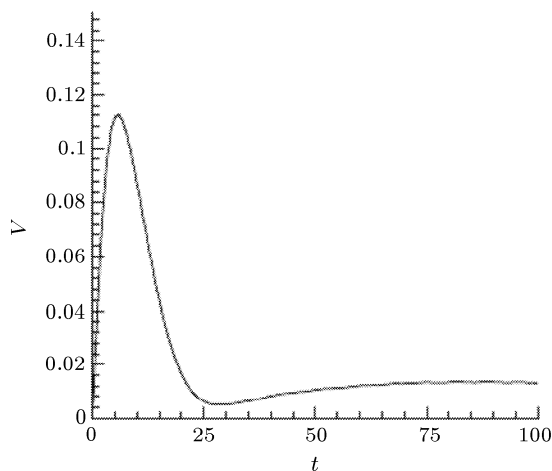


图 4 $Ma = 500, Re = 10$ 时液滴迁移速度随时间变化曲线, $\alpha = 0.3, \beta = 0.3$

是由于液滴内部的温度场在对流传输过程中影响了液滴界面处的温度分布, 液滴内部低温部分在热对流过程中上升, 降低了液滴顶部的温度, 从而减小了液滴界面上的温差, 温差的减小就使得热毛细驱动力下降, 因此液滴最终会稳定在较低的迁移速度状态.

另外, 我们对 Ma 数对液滴稳定状态的迁移速度的影响进行了初步的数值模拟, 结果显示无量纲迁移速度会随着 Ma 的增大而减小, 这个结论与各种实验中得到的结论是相符合的, 如图 5 所示.

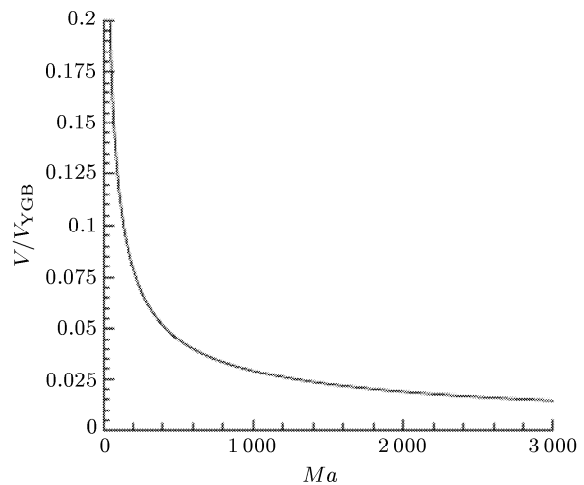


图 5 液滴的无量纲迁移速度随 Marangoni 数的变化趋势, $Re = 10, \alpha = 0.3, \beta = 0.3$

4 实验研究

多年来除了理论上对热毛细迁移问题有深入的研究, 在实验方面前人也做了大量的工作. 早期的实验研究由于条件限制只能在地面上进行, 而且基本上都以气泡迁移为主, 采用中性悬浮的方法, 即通过外加与重力方向同向的温度梯度来使气泡静止, 研究平衡状态下各种物理量的相互关系. 1959 年 YGB^[8] 除给出了线性理论解, 同时也做了相关的地面实验, 他们用千分尺的两砧之间的空隙形成液桥, 外加上冷下热的温差来研究气泡由于热毛细力和浮力平衡稳定住时温度梯度与气泡半径的关系. 从实验上验证了 YGB 理论解中两者关系的正确性. McGrew 等^[40] 通过气泡附着在细的悬臂丝上的方法测量气泡在温度梯度下的热毛细力的大小, 发现气泡在乙醇中的结果很好的符合了 YGB 的结果, 而在甲醇中的结果偏大于 YGB. Hardy^[41] 精确了 YGB 的实验, 并通过实验估算出了硅油的 σ_T , 其结果和液滴悬挂法测出的结果相符. Merritt 和 Subramanian^[42] 研

究浮力与热毛细力不平衡时气泡迁移情况, 他们发现由于在迁移过程中气泡的体积在逐渐变大, 因此气泡先在热毛细力作用下向下迁移, 浮力增大后又会反向迁移. 虽然体积变化比较大但是从实验中得到的气泡迁移速度还是和 YGB 结果比较接近. Wei 和 Subramanian^[43,44] 研究了重力场和温度场耦合作用时多泡迁移问题, 他们发现在多个气泡一起迁移过程中由于大泡运动而导致的母液中温度场的变化对于小泡运动的影响是非常大的. 其他的气泡迁移实验还有 Barton 和 Subramanian^[45] 以及 Morick 和 Woermann^[46].

在地面的液滴迁移实验中由于液滴的密度是可以控制的, 所以可以使用密度相近的液滴和母液来减小迁移过程中浮力的影响, 也就是密度匹配法. 利用密度匹配的方法研究者就可以在地面上近似的实现液滴的纯热毛细迁移过程, 这方面的主要工作有: Wozniak^[47] 利用干涉测量法得到了液滴热毛细迁移时附近的温度场的图像; Hähnel 等^[48] 通过研究了实验中半径与表面张力温度梯度的关系,

对 YGB 的线性结果进行了修正；Rashidnia 和 Balasubramaniam^[49] 利用示踪粒子展现了界面附近的速度场，从中可以清晰的看出热毛细作用对于流动的影响。

地面实验中多少都会受到重力作用的影响，即使密度再接近的两种液体，由于密度会随温度变化，所以在他们的密度只能达到在小段时间内相匹配，其它时候密度的差异还是可能会产生很大的浮力效应，更精确的实验只能在微重力环境中进行。Papazian 和 Wilcox^[50] 首先在音速火箭进行气泡迁移的微重力试验，但是由于控制问题使得气泡并没有发生迁移运动。Thompson^[51] 在 NASA 落塔中进行气泡在不同液体中迁移的研究发现：在蒸馏水中气泡无法运动，在乙二醇中气泡迁移速度比较符合 YGB 值，而在乙醇和硅油中迁移速度则要小于 YGB 值。类似的关于液滴和气泡的火箭落塔实验还很多，例如火箭实验 Smith 等^[52] Meyyappan 等^[53]，Langbein 和 Heide^[54]，Wozniak^[55]，Braun 等^[56]，以及落塔实验 Treuner 等^[57]。我国的微重力实验开展的相对较晚，但是发展速度很快，1996 年 Xie 等^[3] 尝试了用硅油和豆油作为液滴和母液的地面实验，实验的 Re 为 $O(10)$ ，他们发现得到的液滴迁移速度远小于 YGB 理论速度，同时他们还利用 PIV 测得液滴内部的流场照片（图 2），与理论预测相一致。而后 Xie 等^[34,58] 再次使用同样的两种液体进行了落塔实验，发现迁移速度仍然是远小于 YGB 结果，他们认为对流作用的影响是造成两者区别的最大因素，提出在 Re 、 Ma 较大时 YGB 线性结果是不适用的，同时他们也指出由于微重力时间比较短而且黏性随温度变化等问题在实验中迁移速度并没有达到稳定状态。

火箭实验和落塔实验都只是短时间的微重力过程，长时间的迁移问题的研究需要在空间飞行器或者卫星中实现。1987 年美国 NASA 航天飞机的 D-1 计划中就做了两组关于液滴或气泡迁移的实验。第一组实验中研究人员在硅油母液中注入一组气泡以及一组水滴，然后他们发现其中只有气泡有迁移运动，同时气泡迁移速度在部分范围中与数值模拟结果能够很好的符合。这个结果分别被 Nöhle 等^[59] 以及 Szymczyk 等^[60] 发表。在另一组实验中研究者研究了气泡在几种硅油中迁移，他们发现表面粘性随温度的变化实际上是不可忽略的（Neuhaus 和 Feuerbacher^[61]）。1994 年，在 NASA 的 IML-2 空间实验中，Balasubramaniam 等^[62] 进行了液滴和气泡的迁移实验，他们采用 Dow-Corning 硅油作为母液，Fluorinert FC-75 氟液为液滴，实验表明无论

是液滴还是气泡其无量纲迁移速度都会随着 Ma 的增大而减小。1996 年，在 NASA 的生命和微重力科学计划（Life and Microgravity Spacelab, LMS）空间实验中，研究者采用和 IML-2 实验相同的液滴，同时降低了母液的黏性，从而增大了 Re 和 Ma 的范围。在这次实验中他们得到了与 IML-2 实验相同的结论（Hadland 等^[31]），直到 Ma 到 1000 左右液滴的无量纲迁移速度仍然会随着 Ma 的增大而减小。

2002 年底，Xie 等^[63] 在神州四号飞船上做了大 Ma 数的液滴迁移实验，在这个实验中母液采用 5cs 硅油，液滴采用的是 Fluorinert FC-75 氟液， Ma 最大达到了 5500。他们给出了迁移过程中液滴及周围部分的干涉图像，并且再一次验证了在大 Ma 时，液滴的无量纲迁移速度会随着 Ma 的增大而减小，如图 6。实际上在上面几个实验的观测中液滴最终都没有能够达到稳定的迁移速度而是始终保持加速运动，对此大家给出的解释基本都是归结于迁移时间不够，以及黏性系数会在液滴的迁移过程中随着温度增高而减小这两个主要原因。

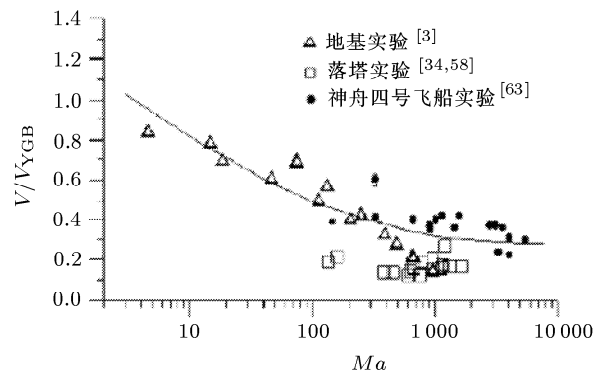


图 6 液滴无量纲迁移速度随 Ma 的变化趋势

5 总结

液滴热毛细迁移问题至今已经研究了几十年，从最初的单滴发展到后来的多滴，从线性问题发展到非线性问题，研究的情况越来越复杂，得到了很多有价值的成果。

仅就单滴迁移问题来说，自最初 YGB 线性理论结果出现以后，大家对此问题研究重点都集中在非线性问题也就是惯性作用和热对流作用对液滴迁移的影响上。其中惯性作用对迁移问题的影响是很小的，这从各种研究结果上看基本上得到了一致的结论，然而热对流作用的影响问题则一直没有得到很好的解决。各种实验研究中观测到的结果反映液

滴的无量纲迁移速度会随 Ma 增大而减小, 直到很大的 Ma 数 (Xie 等^[63] 的实验中 Ma 已经达到了 5500). 但是在 Balasubramaniam 和 Subramanian^[23] 的定常模型的理论分析解中, Re 和 $Ma \rightarrow \infty$ 时, 他们给出的渐进解的趋势则是迁移速度随着 Ma 的增大而增大. 在采用同样定常模型的数值模拟的研究中, Ma 等^[24] 得到的结论在 $Ma > 100$ 时与文^[23] 的理论分析结果是一致的 (以上的这些结论可以参见图 7). 我们对于大 Ma 问题的非定常过程进行了数值模拟, 得到了与实验情况一致结论, 这个结果证明了实验研究的正确性, 同时也开创了大 Ma 液滴迁移非定常问题研究的先例^[39,64]. 除了非定常问题的研究, 关于定常问题的理论模型也需要有进一步的发展和改善, 这样才能使其能更接近于真实的实验情况, 从而为此问题提供更多的理论支持. 由于液滴在迁移问题中的变形并不明显, 因此大 Ma 液滴迁移问题的研究也就成了目前单滴迁移问题中的最重要一个问题, 这个问题的解决将使得单滴迁移问题有一个完整的物理图像.

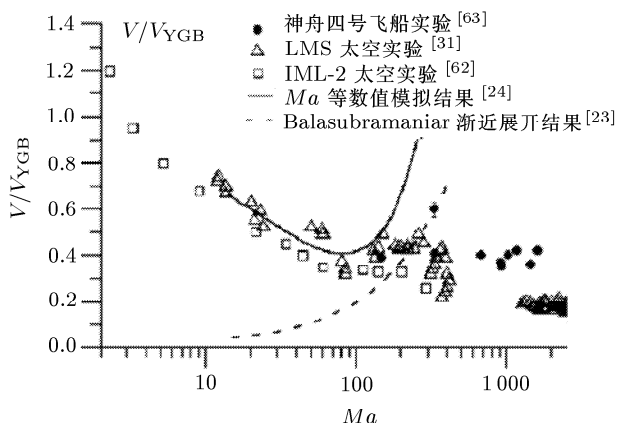


图 7 无量纲速度随 Ma 变化趋势的一些主要文献结果^[63]

当然, 无论是理论还是实验都不会仅限于单滴问题的探索, 在实际应用中更多出现的还是多滴的迁移问题. 在这种情况下, 液滴间的相互影响, 会使得问题变得更加复杂, 这时候界面变形问题已经很难再忽略, 同时由于相互作用而产生的三维效应也需要加以考虑. 对于实验研究来说, 由于空间实验机会很少, 代价大, 因此如何改善地面实验的条件使其最大限度去除重力及外界其他因素的干扰, 如何更好地利用落塔实验环境来进行空间实验的预演及调试, 这些都将是实验研究所面临的重大问题.

参 考 文 献

- Im D J, Kang I S. Electrohydrodynamics of a drop under nonaxisymmetric electric fields. *J Colloid Interface Sci*, 2003, 266: 127~140
- Anderson J L. Colloid transport by interfacial forces. *Ann Rev Fluid Mech*, 1989, 21: 61~99
- Xie J C, Lin H, Han J H, Hu W R. Drop migration of middle Reynolds number in a vertical temperature gradient. *Microgravity Sci Tech*, 1996, 9(2): 95~99
- Nielson G F, Weinberg M C. Outer space formation of a laser host glass. *J Non-Crystalline Solids*, 1977, 23(1): 43~58
- Uhlmann D R. Glass processing in a microgravity environment. In: Rindone G E, ed. *Materials Processing in the Reduced Gravity Environment of Space*. New York: Elsevier, USA, 1982. 269~278
- Ostrach S. Low gravity fluid flows. *Ann Rev Fluid Mech*, 1982, 14: 313~345
- Hershey A V. Ridges in a liquid surface due to the temperature dependence of surface tension. *Phys Rev*, 1939, 56: 204
- Young N O, Goldstein J S, Block M J. The motion of bubbles in a vertical temperature gradient. *J Fluid Mech*, 1959, 6: 350~356
- Subramanian R S. Slow migration of a gas bubble in a thermal gradient. *AIChE Journal*, 1981, 27: 646~654
- Bratukhin Yu K. Termokapillyarnyy dreyf kapel'ki vyzkoy zhidkosti. *Izvestiya Akademii Nauk SSSR, Mekhanika Zhidkostii Gaza*, 1975, 5: 156~161
- Thompson R L, DeWitt K J, Labus T L. Marangoni bubble motion phenomenon in zero gravity. *Chem Eng Commun*, 1980, 5: 299~314
- Subramanian R S. Thermocapillary migration of bubbles and droplets. *Adv Space Res*, 1983, 3: 145~150
- Merritt R M. Bubble Migration and Interactions in a vertical temperature gradient: [Ph.D. Thesis]. Chemical Engineering, Clarkson University, USA, 1988
- Crespo A, Manuel F. Bubble motion under reduced gravity. In: Minster O, Schürmann B, eds. *Proc 4th European Symposium on Materials Sciences under Microgravity*, 1983-04-05~08. Madrid, Spain, Noordwijk, The Netherlands: ESA Publication Division, 1983. 45~49
- Balasubramaniam R, Chai A. Thermocapillary migration of droplets: An exact solution for small marangoni numbers. *J Colloid Interface Sci*, 1987, 119(2): 531~538
- Haj-Hariri H, Nadim A, Borhan A. Effect of inertia on the thermocapillary velocity of a drop. *J Colloid Interface Sci*, 1990, 140(1): 277~286
- Crespo A, Jiménez-Fernández J. Thermocapillary migration of bubbles at moderately large Reynolds numbers. In: Rath H J, ed. *Microgravity Fluid Mechanics, Proc. IUTAM Symposium Bremen*. 1991-09-02~06. Bremen, Germany. Berlin: Springer, 1991
- Crespo A, Jiménez-Fernández J. Thermocapillary migration of bubbles: a semi-analytic solution for large Marangoni numbers. In: Kaldeich Hrsg V B H, ed. *Proc 8th European Symposium on Materials and Fluid Sciences in Microgravity*, 1992-04-12~16. Brueelles, Noordwijk, The Netherlands Esa Publications Division, 1992
- Balasubramaniam R, Subramanian R S. Thermocapillary bubble migration-thermal boundary layers for large Marangoni numbers. *Int J Multiphase Flow*, 1996, 22(3): 593~612

- 20 Balasubramaniam R, Lavery J E. Numerical simulation of thermocapillary bubble migration under microgravity for large Reynolds and Marangoni numbers. *Num Heat Transfer A*, 1989, 16(2): 175~187
- 21 Shankar N, Subramanian R S. The Stokes motion of a gas bubble due to interfacial tension gradients at low to moderate Marangoni numbers. *J Colloid Interface Sci*, 1988, 123(2): 512~522
- 22 Crespo A, Migoya E, Manuel F. Thermocapillary migration of bubbles at large Reynolds numbers. *Int J Multiphase Flow*, 1998, 24(4): 685~692
- 23 Balasubramaniam R, Subramanian R S. The migration of a drop in a uniform temperature gradient at large Marangoni numbers. *Phys Fluids*, 2000, 12(4): 733~43
- 24 Ma X J, Balasubramaniam R, Subramanian R S. Numerical simulation of thermocapillary drop motion with internal circulation. *Num Heat Transfer A*, 1999, 35(3): 291~309
- 25 Dill L H, Balasubramaniam R. Unsteady thermocapillary migration of isolated drops in creeping flow. *Int J Heat Fluid Flow*, 1992, 13(1): 78~85
- 26 Szymczyk J, Siekmann J. Numerical calculation of the thermocapillary motion of a bubble under microgravity. *Chem Eng Commun*, 1998, 69: 129~147
- 27 Merritt R M, Subramanian R S. Bubble migration under the combined action of buoyancy and thermocapillary. In: Rath H J, ed. *Microgravity Fluid Mechanics IUTAM Symposium Bremen 1991-09-02~06*. Berlin, Germany: Springer-Verlag, 1992. 237~244
- 28 Chen J C, Lee Y T. Effect of surface deformation on thermocapillary bubble migration. *AIAA J*, 1992, 30(4): 993~998
- 29 Welch S W J. Transient thermocapillary migration of deformable bubbles. *J Colloid Interface Sci*, 1998, 208: 500~508
- 30 Ehmann M, Wozniak G, Siekmann J. Numerical analysis of the thermocapillary migration of a fluid particle under zero-gravity. *Z Angew Math Mech*, 1992, 72(8): 347~358
- 31 Hadland P H, Balasubramaniam R, Wozniak G, Subramanian R S. Thermocapillary migration of bubbles and drops at moderate to large Marangoni number and moderate Reynolds number in reduced gravity. *Experiments in Fluids*, 1999, 26: 240~248
- 32 Haj-Hariri H, Shi Q, Borhan A. Thermocapillary motion of deformable drops at finite Reynolds and Marangoni numbers. *Phys Fluids*, 1997, 9(4): 845~855
- 33 Geng R H, Hu W R, Jin Y L, Ao C. Unsteady model of drop Marangoni migration in microgravity. *Acta Mech Sin*, 2002, 18(3): 227~234
- 34 Xie J C, Lin H, Han J H, et al. Experimental investigation on Marangoni drop migrations using drop shaft facility. *Int J Heat Mass Transfer*, 1998, 41(14): 2077~2081
- 35 Wang Y X, Lu X Y, Zhuang L X, et al. Thermocapillary motion of deformable drops at finite Reynolds and Marangoni numbers. *Acta Astronautica*, 2004, 54: 325~335
- 36 Bassano E, Castagnolo D. Marangoni migration of a Methanol drop in Cyclohexane matrix in a closed cavity. *Microgravity Sci Tech*, 2003, 14(1): 20~33
- 37 Nas S, Tryggvason G. Thermocapillary interaction of two bubbles or drops. *Int J Multiphase Flow*, 2003, 29: 1117~1135
- 38 Nas S, Muradoglu M, Tryggvason G. Pattern formation of drops in thermocapillary migration. *Int J Heat Mass Transfer*, 2006, 49: 2265~2276
- 39 Gao P, Yin Z H, Hu W R. Thermocapillary motion of droplets at large Marangoni numbers. *Adv Space Res*, 2008, 41: 2121~2106
- 40 McGrew J L, Rehm T L, Grisley R G. The effect of temperature induced surface tension gradients on bubble mechanics. *Appl Sci Res*, 1974, 29(1): 195~210
- 41 Hardy S C. The motion of bubbles in a vertical temperature gradient. *J Colloid Interface Sci*, 1979, 69(1): 157~162
- 42 Merritt R M, Subramanian R S. The migration of isolated gas bubbles in a vertical temperature gradient. *J Colloid Interface Sci*, 1988, 125(1): 333~339
- 43 Wei H, Subramanian R S. Interactions between two bubbles under isothermal conditions and in a downward temperature gradient. *Phys Fluids*, 1994, 6(9): 2971~2978
- 44 Wei H, Subramanian R S. Migration of a pair of bubbles under the combined action of gravity and thermocapillarity. *J Colloid Interface Sci*, 1995, 172: 395~406
- 45 Barton K D, Subramanian R S. The migration of liquid drops in a vertical temperature gradient. *J Colloid Interface Sci*, 1989, 133(1): 211~222
- 46 Morick F, Woermann D. Migration of air bubbles in silicone oil under the action of buoyancy and thermocapillarity. *Ber Bunsenges Phys Chem*, 1993, 97(8): 961~969
- 47 Wozniak G. Experimentelle untersuchung des einflusses des einflusses der thermokapillarität auf die bewegung von tropfen und blasen: [Ph.D. Thesis]. Mechanics, Universität-GH-Essen Federal Republic of Germany, 1986
- 48 Hühnel M, Delitzsch V, Eckelmann H. The motion of droplets in a vertical temperature gradient. *Phys Fluids A*, 1989, 1(9): 1460~1466
- 49 Rashidnia R, Balasubramaniam R. Thermocapillary migration of liquid droplets in a temperature gradient in a density matched system. *Experiments in Fluids*, 1991, 11: 167~174
- 50 Papazian J M, Wilcox W R. Interaction of bubbles with solidification interfaces. *AIAA J*, 1978, 16: 447~451
- 51 Thompson R L. Marangoni Bubble Motion in Zero Gravity. In: [Ph.D. Thesis]. Engineering Science, University of Toledo, USA, 1979
- 52 Smith H D, Mattox D M, Wilcox W R, et al. Experimental observation of the thermocapillary driven motion of bubbles in a molten glass under low gravity conditions. In: Rindone G E, ed. *Materials Processing in the Reduced Gravity Environment of Space*. New York: North-Holland, 1982. 279~288
- 53 Meyyappan M, Subramanian R S, Wilcox W R, Smith H D. Bubble behavior in molten glass in a temperature gradient. In: Rindone G E, ed. *Materials Processing in the Reduced Gravity Environment of Space*. New York: North-Holland, 1982. 311~314
- 54 Langbein D, Heide W. The separation of liquids due to Marangoni convection. *Adv Space Res*, 1984, 415: 27~36
- 55 Wozniak G. On the thermocapillary motion of droplets under reduced gravity. *J Colloid Interface Sci*, 1991, 141(1): 245~254
- 56 Braun B, Ikier C, Klein H, Woermann D. Thermocapillary migration of droplets in a binary mixture with miscibil-

- ity gap during liquid/liquid phase separation under reduced gravity. *J Colloid Interface Sci*, 1993, 159: 515~516
- 57 Treuner M, Galindo V, Gerbeth G, et al. Thermocapillary bubble migration at high Reynolds and Marangoni numbers under low gravity. *J Colloid Interface Sci*, 1996, 179: 114~127
- 58 Xie J C, Lin H, Han J H, et al. Experimental investigation of thermocapillary migration of isolated drops. *Adv Space Res*, 1999, 24(10): 1409~1415
- 59 Nöhle R, Neuhaus D, Siekmann J, et al. Separation of fluid phases and bubble dynamics in a temperature gradient-a Spacelab D1 experiment. *Z Flugwiss Weltraumforsch*, 1987, 11: 211~213
- 60 Szymczyk J A, Wozniak G, Siekmann J. On Marangoni bubble motion at higher Reynolds and Marangoni numbers under microgravity. *Appl Microgravity Tech*, 1987, 1(1): 27~29
- 61 Neuhaus D, Feuerbacher B. Bubble motions induced by a temperature gradient. In: Heiss Mit T, Schneiders, eds. Proc 6th European Symposium on Materials Sciences under Microgravity Conditions, 1986-12-02~05. Bordeaux, France, Noordwijk, The Netherlands: ESA Publication Division, 1987. 241~244
- 62 Balasubramaniam R, Lacy C E, Wozniak G, Subramanian R S. Thermocapillary migration of bubbles and drops at moderate values of the Marangoni number in reduced gravity. *Phys Fluids*, 1996, 8(4): 872~880
- 63 Xie J C, Lin H, Zhang P, et al. Experimental investigation on thermocapillary drop migration at large Marangoni number in reduced gravity. *J Colloid Interface Sci*, 2005, 285: 737~743
- 64 Gao P, Yin Z H, Hu W R. Numerical investigation of thermocapillary migration of the drop for large Marangoni numbers. *Sci in China: E*, 2007, 50(5): 694~696

THE PROGRESSES OF DROP THERMOCAPILLARY MIGRATION RESEARCH*

GAO Peng YIN Zhaohua[†] HU Wenrui

National Microgravity Laboratory, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China

Abstract The migration of bubbles or droplets in liquids is a very important topic in materials science, chemical engineering and fundamental researches. Under the micro-gravity condition, if the temperature gradient of the background flow field is non-zero, bubbles or droplets will move because of differences in interfacial tension on the drop surface. Such motion is termed Marangoni migration or thermocapillary migration. In this paper, the progresses of researches on the drop/bubble thermocapillary migration, including theoretical analysis, numerical simulation and experimental studies, are reviewed. At present, the theoretical analyses mainly focus on linear or weak non-linear steady problems. Some numerical simulations were carried out on unsteady migration processes of drops with the Marangoni number less than 100. When the heat convection effect is strong (over 100), no numerical results were reported that are consistent with those from experiments. In this paper, we summarize previous research results, give our new numerical results of unsteady drop migration problems with large Marangoni numbers and discuss new phenomena under this condition. Finally, some problems in current studies are pointed out and the development of drop thermocapillary migration problems in future is discussed.

Keywords thermocapillary migration of drops, microgravity, heat convection effect

* The project supported by the National Natural Science Foundation of China (G10502054, G10432060) and Chinese Academy of Science Innovation Program

[†] E-mail: zhaohua.yin@imech.ac.cn