

Procese de producere a picăturilor bazate pe instabilitatea lichidelor imiscibile în tuburi capilare

Autor: Laura -Teodora Vlăişan

Coordonator Ştiinţific: Conf. Dr. Claudiu Pătraşcu

Rezumat:

Studiul contribuie la extinderea metodelor existente de generare a picăturilor cu relevanţă pentru aplicaţiile microfluidice medicale, integrate în sistemele biochip pentru medicina translaţională. Metoda este fundamentată pe investigarea unui mecanism nou de formare a picăturilor bazat pe instabilitatea liniei de contact dintre două fluide imiscibile la nivelul tuburilor capilare. Fenomenul este declanşat de inducerea instabilităţii la nivelul interfeţei prin extragerea lichidului care ocupă iniţial capilarul, acesta din urmă fiind aflat în contact cu suprafaţa liberă a unui rezervor preumplut cu un alt lichid imiscibil.

Cercetarea analizează din perspectivă hidrodinamică curgerea celor două fluide în condiţiile unei linii de contact instabile cu potenţial de producere controlată de picături, punând accent pe identificarea debitului critic necesar desprinderii, a numărului şi poziţiei faţă de intrarea lichidului în capilar a picăturilor formate. De asemenea, este prezentată o diagramă de regim bazată pe rezultatele experimentale, care corelează numărul şi locul de formare al picăturilor cu debitul de extragere, identificând un interval optim de funcţionare între 2 şi 7 $\mu\text{L}/\text{s}$.

Deşi orientarea principală este una fundamentală, rezultatele obţinute evidenţiază conexiuni naturale cu direcţiile aplicative, în special în domeniile microfluidicii şi biochipurilor. Fenomenele analizate pot constitui baza unor viitoare soluţii tehnice pentru generarea controlată a picăturilor sau proceselor de separare la scară micrometrică.

Cuvinte cheie: fluide imiscibile, interfaţă, linie de contact, picături, debit, extragere, capilaritate.

1. Introducere:

Transportul lichidelor în geometrii capilare reprezintă unul dintre fenomenele fundamentale ale mecanicii fluidelor, cu aplicabilitate directă în microfluidică medicală, inginerie biochimică şi sisteme de diagnostic rapid [1], [2]. Spre deosebire de abordările clasice bazate pe curgerea spontană a unui singur fluid, sistemele cu două fluide imiscibile induc o complexitate suplimentară la nivelul interfeţei, datorită tensiunii interfaciale, forţelor vâscoase şi dinamicii liniei de contact ce interacţionează simultan, determinând comportamente interfaciale greu de prezis şi de controlat [3], [4]. În acest context, debitul de extragere impus extern reprezintă factorul cinematic determinant: prin modificarea echilibrului dintre forţele capilare şi cele vâscoase, acesta controlează viteza cu care fluidul invadator îl dezlocuieşte pe cel pre-existent şi, implicit, declanşarea şi caracteristicile instabilităţii interfaciale. Controlul diametrului, al frecvenţei de desprindere şi al poziţiei picăturilor formate reprezintă o provocare centrală în proiectarea biochipurilor pentru detectarea markerilor biologici, analiza sângelui şi administrarea controlată a medicamentelor [5], [6], [7].

Studiile anterioare au investigat cu precădere curgerea pasivă și spontană a unui singur fluid într-un tub capilar gol, furnizând modele analitice bazate pe ecuațiile clasice ale mecanicii fluidelor [4], [8]. Atunci când capilarul este preumplut cu un lichid vâscos și un al doilea fluid imiscibil este introdus activ, dinamica fenomenului se schimbă: interfața devine susceptibilă la instabilitate, generând o serie de picături prin mecanismul cunoscut în literatura drept pinch-off [8], [9]. Dimensiunea și frecvența picăturilor sunt influențate de vâscozitate, tensiune interfacială, unghi de contact și viteza de avans [3], [9]. Înțelegerea rolului debitului de extragere ca parametru de control al acestui fenomen constituie o necesitate stringentă pentru dezvoltarea sistemelor microfluidice avansate, capabile să gestioneze probe biologice cu precizie și fără infrastructură complexă de laborator [1], [10]. Cu toate acestea, nu există în literatura de specialitate studii care să caracterizeze sistematic influența unui debit de extragere impus extern asupra numărului și poziției picăturilor formate de-a lungul capilarului, aspect pe care prezentul studiu îl adresează în mod direct.

Prezenta lucrare propune și validează experimental o metodă nouă de generare controlată a picăturilor bazată pe instabilitatea interfeței dintre două lichide imiscibile, apă și ulei de floarea soarelui, într-un tub capilar din sticlă. Metoda implică impunerea unui debit de extragere cu ajutorul unei pompe seringă, care forțează apa din rezervor să pătrundă în capilar și să dislocuiască uleiul. Se determină debitul critic de declanșare a instabilității, se identifică numărul și poziția picăturilor formate în funcție de debitul impus și se propune un model teoretic pentru estimarea pragului în curgerea naturală. Rezultatele sunt prezentate într-o diagramă de regim unde se poate identifica un interval optim de control între 2 și 7 $\mu\text{L/s}$, în care procesul de desprindere a picăturilor este recurent și predictibil. Secțiunile următoare prezintă cadrul teoretic, montajul experimental, rezultatele și concluziile cercetării.

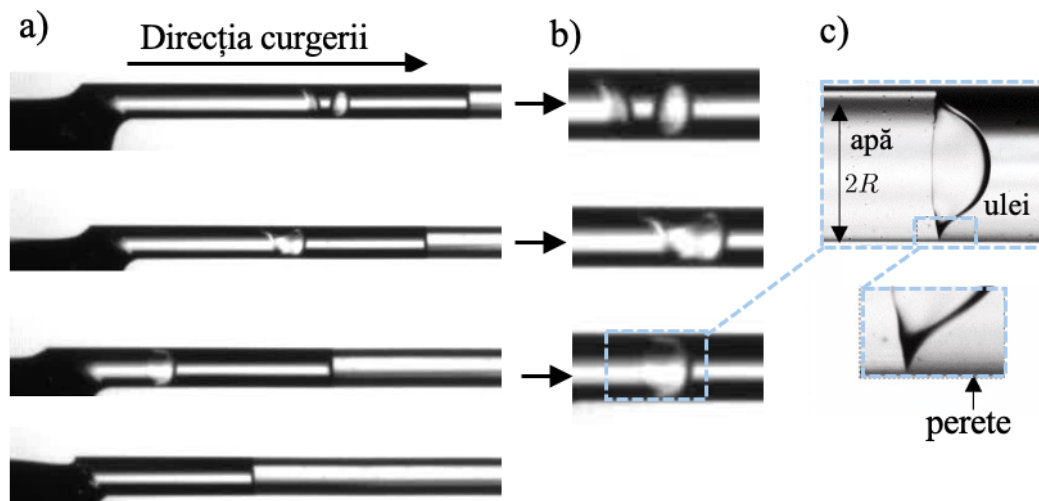


Fig.1. (a) Serie de imagini care surprind evoluția procesului în timp pentru un tub capilar preumplut cu ulei de floarea soarelui; (b) Evidențierea stadiului procesului; (c) Meniscul format de linia de contact cu pereții tubului (Imagine preluată în scop ilustrativ din [11]).

2. Conținut

2.1 Problema analizată și obiectivele cercetării

Studiul experimental și teoretic al interfețelor instabile necesită înțelegerea mecanismelor care guvernează dinamica liniei de contact și ruperea acesteia în picături, justificându-se prin gradul ridicat de aplicabilitate al picăturilor astfel formate într-un spectru larg de aplicații ingineresti. Producerea picăturilor unde diametrul, momentul desprinderii și distanța dintre acestea poate fi controlată reprezintă principala provocare a funcțiilor sistemelor microfluidice moderne cu aplicabilitatea fenomenelor conexe asociate dinamicii fenomenului studiat.

Problema analizată în prezenta lucrare vizează studiul unor procese fundamentale interfaciale datorate instabilității liniei de contact dintre două fluide imiscibile la nivelul tuburilor capilare din sticlă. Atunci când un capilar este preumplut cu un lichid vâscos, iar un al doilea lichid, imiscibil, este introdus prin extragerea celui inițial la un debit ce depășește un prag critic, meniscul concav format la interfața celor două lichide devine instabil, conducând la desprinderea spontană și recurentă de picături de apă. Înțelegerea mecanismelor fizice ce guvernează acest proces și identificarea parametrilor hidrodinamici de control sunt factori determinanți în optimizarea sistemelor microfluidice bazate pe capilaritate.

Obiectivele principale ale acestui studiu sunt:

- propunerea unei metode inovatoare de formare a picăturilor;
- determinarea experimentală a debitului critic;
- identificarea numărului și poziției picăturilor formate în funcție de debitul de extragere;
- propunerea unui model teoretic pentru estimarea pragului în curgerea naturală;
- identificarea intervalului optim de debite în care procesul de formare a picăturilor este recurent și controlabil.

2.2 Contextul științific relevant subiectului

Capilaritatea este un fenomen fundamental în dinamica fluidelor, având aplicații în numeroase domenii, de la biomedicină și microfluidică până la procese industriale și ecologice. Transportul lichidelor în geometrii capilare este guvernat de forțele capilare, care determină mișcarea fluidelor fără necesitatea unei surse externe de energie. Studiul fenomenelor ce au la bază capilaritatea a cunoscut o dezvoltare riguroasă în ultimele decenii, pe fondul avansului tehnicilor experimentale și numerice capabile să surprindă instabilitatea liniei de contact.

Deși multe lucrări de specialitate s-au concentrat pe studiul invaziei unui singur fluid într-un tub capilar gol, cercetările recente explorează curgerile capilare într-un tub orizontal unde o fază lichidă este înlocuită de un alt lichid imiscibil. Spre deosebire de avansul unui singur fluid într-un tub capilar, unde procesul este dominat de tensiunea superficială lichid-aer, într-un sistem cu două fluide imiscibile, avansul este influențat atât de tensiunea interfacială, cât și de forțele vâscoase generate la interfață [3].

Revizuirile ample ale literaturii, precum sinteza studiilor realizate în ultimii o sută de ani cu privire la transportul spontan al lichidelor este concepută în [4] și arată că, desi modelele analitice clasice bazate pe ecuațiile fundamentale, constituie o bază teoretică solidă, ele sunt limitate de condițiile de neglijare a forțelor inerțiale în anumite configurații, de stabilirea unei valori constante pentru

unghiul de contact sau impunerea unui regim laminar de curgere. De asemenea, studiul atrage atenția asupra modelelor de curgere în cadrul geometriilor mai complexe ale canalului, întrucât este influențată valoarea presiunii Laplace, datorită dependenței de curbura secțiunii transversale. Un aspect de interes major în acest context este formarea picăturilor la interfața dintre cele două lichide, unde studiile recente au evidențiat faptul că, atunci când un fluid de vâscozitate mai mică invadează un tub capilar preumplut cu un lichid mai vâscos, procesul de avans poate conduce la generarea spontană a picăturilor. Acest fenomen este influențat de factori precum vâscozitatea, dinamica liniei de contact, viteza de avans și geometria capilarului [12].

Orientarea tubului capilar influențează semnificativ comportamentul interfeței. În configurație verticală, avansul fluidului este limitat de gravitație, iar meniscul poate trece de la o formă concavă la una convexă pe măsură ce sistemul se apropie de înălțimea de echilibru. În poziție orizontală, neglijarea efectelor gravitaționale modifică semnificativ dinamica sistemului [11]. În absența gravitației, apa pătrunde mai rapid, iar pelicula de ulei rămasă pe pereți, ca urmare a deplasării fluidului, amplifică instabilitatea interfeței. Sub acțiunea concomitentă a gradientului de presiune, această instabilitate se accentuează până la ruperea interfeței, generând spontan formarea de picături [11].

Cercetările asupra dinamicii interfețelor lichid-lichid în geometriile capilare orizontale au arătat importanța mai multor caracteristici esențiale. În studiul [11] a fost analizată curgerea apei într-un tub capilar preumplut cu ulei, demonstrându-se că în poziție orizontală, procesul de formare spontană a picăturilor depinde de lungimea coloanei lichidului pre-existent. Experimental, s-a observat că poziția separării picăturilor poate fi ajustată prin controlul cantității inițiale de lichid, picăturile formându-se la distanțe progresiv mai mari față de punctul de intrare atunci când coloana inițială de ulei este mai lungă. Această tendință este confirmată și de rezultatele studiului [3], unde s-a demonstrat că dimensiunea și frecvența picăturilor sunt influențate de proprietățile fizice ale fluidelor, în special de vâscozitatea și tensiunea interfacială.

Alte studii au evidențiat faptul că, într-un tub capilar preumplut, se pot manifesta trei regimuri distincte de curgere: un regim convențional de încetinire, un regim accelerat și un regim cu evoluție liniară în timp. În cazul fiecăruia dintre aceste regimuri aerul pre-existent în tub este neglijat. Dacă acesta este înlocuit cu un alt lichid, comportamentul sistemului se schimbă și apare un regim accelerat, valabil atunci când lichidul invadator este mai puțin vâscos decât cel înlocuit [8]. Spre deosebire de procesul clasic, în care deplasarea meniscului încetinește odată cu trecerea timpului, în regimul de accelerare, viteza meniscului crește pe măsură ce acesta avansează și se apropie de capătul tubului, datorită rezistenței la înaintare care se micșorează continuu [8].

Mecanismul de desprindere al picăturilor, cunoscut drept pinch-off, a fost detaliat în studiul [8], care a documentat tranziția de la o interfață stabilă la una instabilă, evidențiind influența numărului capilarității (Ca) și a unghiului de contact asupra mecanismului de formare a picăturilor. Înainte de formarea propriu-zisă, o parte a cantității de lichid care intră în capilar trece printr-o subțiere progresivă care duce la ruperea coloanei de lichid (necking). Pe măsură ce diametrul coloanei se subțiază, stratul de fluid ce aderă la perete se îngroașă, favorizând ruperea interfeței în picături separate din lichidul pre-existent. Această subțiere este accelerată de diferențele de presiune locale și de instabilitatea Rayleigh-Plateau, până când fluidul de pe pereți converge și se unește exact în centrul tubului. Studiul subliniază că fenomenul are loc indiferent de unghiul de contact, deși gradul de umectare modifică pragul de instabilitate: pentru valori ale unghiului de contact mai

mari de 90° , Ca necesar declanșării procesului este cu aproximativ trei ordine de mărime mai mare față de situațiile cu unghi sub 90° [8].

Influența gradului de umectare asupra caracteristicilor fenomenului este detaliată în [9]. Lucrarea evidențiază existența unei tranziții forțate de la un grad de umectare la altul, determinată de dependența de viteza de deplasare a fluidului și de proprietățile suprafeței. La viteze reduse, interfața se mișcă fără a suferi deformări, în timp ce vitezele mai mari duc la depășirea pragului critic, ceea ce conduce la o tranziție de umectare forțată, iar lichidul inițial din tub lasă o peliculă pe pereți. Conform [9], dimensiunea picăturilor și intervalul de timp dintre două desprinderi consecutive cresc odată cu Ca , dar scad pe măsură ce unghiul de contact se mărește. Distanța dintre picături variază invers cu numărul capilarității.

O abordare diferită este prezentată în [13], unde dinamica fenomenului se modifică datorită separării inițiale a celor două lichide printr-o bulă de aer. Cercetarea demonstrează că prezența și dimensiunea bulei de aer au o influență minoră asupra vitezei de pătrundere a lichidului în tub, însă mișcarea acesteia facilitează drenajul uleiului prin depunerea unui strat subțire pe pereții tubului. Grosimea filmului depus poate fi exprimată prin legea lui Taylor pentru valori mici ale numărului capilarității. La valori mari ale Ca , pelicula de lichid depusă de bula Taylor poate deveni instabilă, influențând dinamica curgerii.

Studiile din domeniu arată că formarea picăturilor la interfața dintre două fluide imiscibile este controlată de echilibrul fin dintre tensiunea superficială, vâscozitate și dinamica liniei de contact. Cercetările recente au demonstrat că aceste mecanisme pot fi manipulate prin modificări ale geometriei, vitezei de curgere și proprietăților suprafeței, transformând un fenomen natural într-un proces aproape controlabil. Deși literatura existentă acoperă multiple aspecte ale interacțiunilor lichid-lichid, nu există studii care să caracterizeze sistematic influența unui debit de extragere impus asupra numărului și poziției picăturilor formate, aspect la care prezentul studiu aduce o contribuție proprie.

2.3 Aspecte teoretice

Înțelegerea fenomenelor de formare a picăturilor la interfața dintre două fluide imiscibile în tuburi capilare presupune cunoașterea unui set de concepte fundamentale din mecanica fluidelor, termodinamică și fizică interfacială. Prezenta secțiune sintetizează cadrul teoretic necesar interpretării rezultatelor experimentale, acoperind proprietățile fizice ale fluidelor, fenomenele de suprafață și ecuațiile care guvernează curgerea în sisteme capilare.

Comportamentul și dinamica unui fluid sunt guvernate de o serie de proprietăți fizice fundamentale, dintre care cele mai relevante pentru studiul curent sunt densitatea și vâscozitatea.

Densitatea unui fluid (ρ) poate fi definită ca masa (sau inerția) raportată la unitatea de volum. Din perspectivă termodinamică, aceasta nu reprezintă o constantă, ci o funcție dependentă de marimile termodinamice de stare, presiune și temperatură, care, la rândul lor, pot varia în timp și spațiu [14].

Vâscozitatea (η) este o funcție de material, ce măsoară rezistența unui fluid la curgere, fiind determinată de frecările interne ale straturilor de fluid aflate în mișcare. Vâscozitatea variază cu temperatura și presiunea. În cazul lichidelor, vâscozitatea variază invers proporțional cu

temperatura, iar în cazul gazelor aceasta crește cu temperatura. Din punct de vedere mecanic, vâscozitatea este definită ca raportul dintre efortul tangențial și viteza de deformare specifică [14].

În timp ce proprietățile de material ne descriu comportamentul fluidului aflat sub acțiunea unor forțe, la granițele fizice ale acestuia apar fenomene diferite, dictate de interacțiunile intermoleculare. Moleculele aflate la granița fluidului se găsesc într-o stare energetică nefavorabilă, deoarece sunt private, de aproximativ, jumătate din legăturile intermoleculare prezente în volumul de fluid. În consecință, sistemul este predispus natural către o stare de minimizare a numărului de molecule și a energiei de la interfață, implicând astfel și scăderea ariei de contact dintre două fluide imiscibile [15].

Tensiunea superficială reprezintă lucrul mecanic necesar pentru a crește suprafața de contact dintre două fluide cu o unitate de arie. Cantitatea de lucru mecanic necesară crește odată cu numărul de molecule care trebuie aduse la interfața nou creată. Din perspectivă termodinamică se propune definirea tensiunii superficiale ca variația energiei libere a sistemului (dF) raportată la variația ariei interfeței (dA), proces evaluat la un număr de molecule, volum și temperatură constante [15].

$$\sigma = \left[\frac{dF}{dA} \right]_{n,T,V} \quad (1)$$

Din punct de vedere mecanic, tensiunea superficială se manifestă ca o forță distribuită tangențial de-a lungul interfeței, cu unitatea de măsură N/m. Aceasta este o consecință directă a structurii microscopice a fluidului și a interacțiunilor intermoleculare, iar efectele ei devin evidente atunci când lichidul intră în contact cu o suprafață solidă. În cazul lichidelor care udă pereții, sistemul tinde să își minimizeze energia de suprafață prin echilibrul dintre forțele de coeziune și cele de adeziune [4], [15]. Această interacțiune conduce la pătrunderea și ascensiunea spontană a lichidului în capilar, fenomen cunoscut drept capilaritate.

Capilaritatea reprezintă capacitatea de transport spontan a lichidelor în geometrii capilare, în mod natural, realizat în opoziție cu forța gravitațională, fără necesitatea unui aport extern de energie, datorită forțelor capilare care permit absorbția lichidului. Pentru a determina dacă un tub cilindric este considerat capilar raza sa (R) trebuie să fie mai mică decât lungimea capilară (l_c) definită:

$$l_c = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho g}}, \quad (2)$$

unde σ reprezintă tensiunea superficială, ρ densitatea fluidului, iar g accelerația gravitațională [15].

Analiza curgerii capilare se realizează cu ajutorul numerelor adimensionale care descriu echilibrul dintre diferitele forțe implicate. Numărul capilarității este cel mai relevant în cadrul acestei cercetări și exprimă raportul dintre forțele vâscoase și tensiunea superficială:

$$Ca = \frac{F_f}{F_\sigma} = \frac{\eta V}{\sigma}. \quad (3)$$

Când $Ca < 10^{-2}$, forțele capilare domină și curgerea spontană este favorizată. Pentru valori mari ale Ca , forțele vâscoase inhibă curgerea și conduc la fragmentarea fazei în picături dispersate. Numărul Ca este parametrul central în caracterizarea pragului de instabilitate al interfeței și depinde critic de valoarea tensiunii interfaciale [3].

Un alt aspect important este reprezentat de unghiul pe care îl face interfața lichid-aer cu suprafața solidă. Acest unghi este cunoscut sub denumirea de unghi de contact (θ) și arată afinitatea lichidului față de materialul din care este confecționat peretele. Dacă unghiul depășește 90° , lichidul udă materialul, considerat hidrofil în cazul apei. Altfel, dacă unghiul de contact are valori sub 90° materialul respinge lichidul și este considerat hidrofob în cazul apei.

De asemenea, cel mai important parametru hidrodinamic în cadrul acestui studiu este reprezentat de debit (Q), fiind considerat conceptual ca fluxul vitezei printr-o suprafață. Altfel debitul poate fi definit ca volumul de lichid scurs pe unitatea de timp (m^3/s , practic debitul volumetric) [14].

2.4 Soluția propusă

Metoda propusă pentru producerea controlată a picăturilor se bazează pe instabilizarea interfeței dintre două lichide imiscibile generată de un debit de extragere impus, în contrast cu metodele pasive clasice care exploatează curgerea capilară naturală.

Principiul fizic care stă la baza metodei propuse poate fi descris prin prisma echilibrului dintre forțele capilare și cele vâscoase, cuantificate de numărul capilarității (Ca). Odată ce debitul de extragere impus depășește pragul critic determinat de curgerea naturală, viteza de avans V crește brusc, antrenând instabilitatea liniei de contact. În aceste condiții, forțele vâscoase depășesc capacitatea tensiunii interfaciale de a menține forma meniscului, declanșând mecanismul de tip necking, urmat de ruperea coloanei de lichid și formarea unei picături de apă care se deplasează prin ulei.

Utilitatea metodei propuse constă în transformarea unui fenomen impredictibil într-un proces controlabil prin reglarea parametrului principal (debitul de extragere).

2.5 Realizarea experimentelor

Metoda implică utilizarea unor tuburi capilare din sticlă având un diametru interior de $D=1.15 \text{ mm}$ și o lungime de $L=80 \text{ mm}$. Capilarele sunt dispuse orizontal și umplute cu ulei de floarea soarelui, având următoarele proprietăți de material: densitate $\rho_u = 920 \text{ kg/m}^3$, vâscozitate $\eta_u = 55 \text{ mPa}\cdot\text{s}$. Capilarul umplut cu ulei este conectat la un rezorvor cu suprafața liberă ce conține apă demineralizată, cu proprietățile: densitate $\rho_a = 998 \text{ kg/m}^3$, vâscozitate $\eta_a = 1 \text{ mPa}\cdot\text{s}$. Celălalt capăt este conectat la o pompă seringă, care permite impunerea unui debit de extragere ce va forța apa din rezorvor să pătrundă în capilar. Cele două lichide sunt imiscibile, iar tensiunea interfacială determinată prin metoda picăturii pendentiv este $\gamma_{au} = 22 \text{ mN/m}$. Densitatea a fost măsurată prin metode standard de tip masă pe volum, iar vâscozitatea cu reometrul rotațional Anton Paar [15].

La contactul dintre cele două lichide imiscibile se formează un menisc concav îndreptat către capătul capilarului conectat la pompă. Pentru valori ale debitului mai mici față de un prag critic, linia de contact formată de menisc cu peretele tubului capilar se deplasează simultan cu ansamblul format din cele două lichide. Odată depășit acest prag, meniscul devine instabil, ceea ce conduce la formarea unei picături de apă care se deplasează prin ulei atât timp cât debitul de extragere rămâne constant. Procesul de formare al picăturilor este investigat pentru debite de extragere cuprinse între $1 \mu\text{L/s}$ și $10 \mu\text{L/s}$.

Întregul proces a fost înregistrat cu o cameră ultra-rapidă Photron FastCam la o frecvență de achiziție de 250 fps. După achiziție, imaginile au fost procesate în ImageJ sau Matlab. O reprezentare schematică a procedurii se regăsește în Fig. 2.

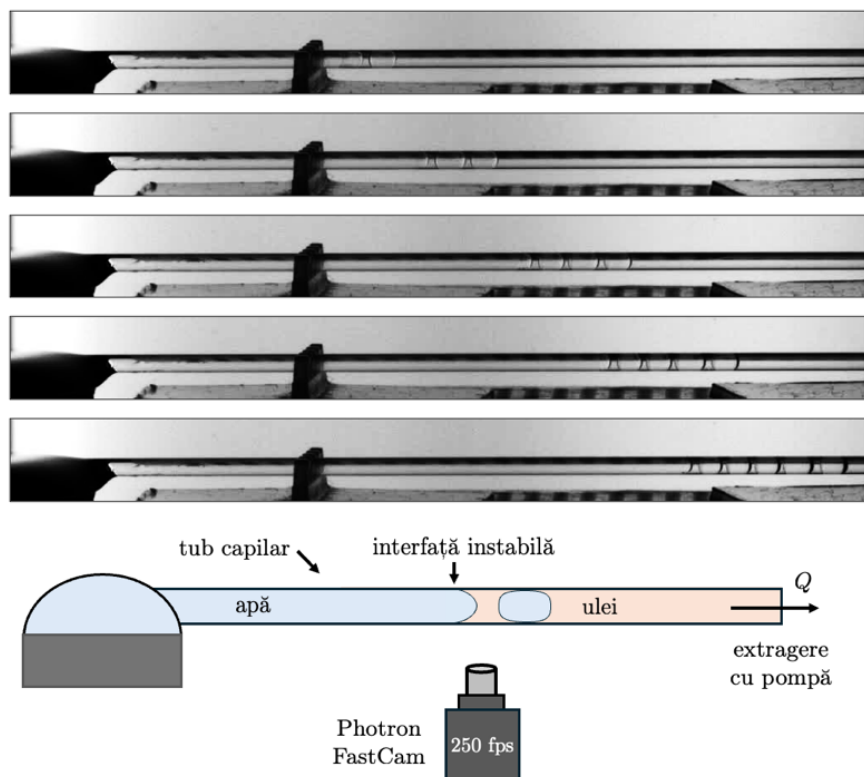


Fig.2. Serie de imagini care arată procesul de formare a picăturilor la un debit de $7 \mu\text{L/s}$ și reprezentarea schematică a metodei experimentale.

Experimentele realizate au vizat atingerea obiectivelor precizate în subcapitolul 2.1.

2.6 Interpretarea rezultatelor

Pentru estimarea debitului ce trebuie impus pentru a induce instabilitatea interfeței a fost considerat cazul curgerii naturale a lichidelor în tuburi capilare. În cadrul acestor geometrii lichidele pot curge de la sine, fără necesitatea unei surse externe de energie.

În modelul considerat, capilarul este parțial preumplut cu o coloană de ulei, iar presiunea negativă la interfața ulei-aer determină pătrunderea apei în tub. Forța motoare este astfel forța de tensiune superficială, în timp ce rezistența la curgere este dată de forțele de frecare vâscoasă ale celor două lichide. Pentru simplitate, am neglijat contribuția frecării la nivelul liniei de contact, care reprezintă și astăzi una dintre problemele nerezolvate ale mecanicii fluidelor.

În aceste condiții, se poate scrie:

$$\pi D \gamma_u \cos(\theta_u) \sim 8 \pi \eta_a z \dot{z} + 8 \pi \eta_u H_0 \dot{z}, \quad (4)$$

unde membrul stâng reprezintă forța de tensiune superficială, cu θ_u ca unghi de contact, iar membrul drept forțele de frecare ale celor două lichide, $z(t)$ fiind poziția coloanei de apă în capilar, $\dot{z}$ viteza cu care se deplasează sistemul, iar H_0 lungimea coloanei de ulei care induce curgerea naturală în capilar [11]. Menționăm faptul că ecuația descrie curgerea naturală (prin capilaritate) a celor două lichide în tuburi capilare în ipoteza unor forțe de inerție neglijabile.

După o serie de simplificări, modelul conduce la o ecuație diferențială care poate fi rezolvată numeric:

$$\dot{z} = \frac{D\gamma_u \cos(\theta_u)}{8\eta_a z + 8\eta_u H_0}. \quad (5)$$

Rezolvarea numerică în Matlab pentru $z(t)$ permite aflarea soluției pentru determinarea vitezei $\dot{z}$, care va duce la determinarea debitului :

$$Q_{nat} = \frac{\dot{z}\pi D^2}{4}. \quad (6)$$

Figura 3 prezintă rezultele obținute numeric în Matlab.

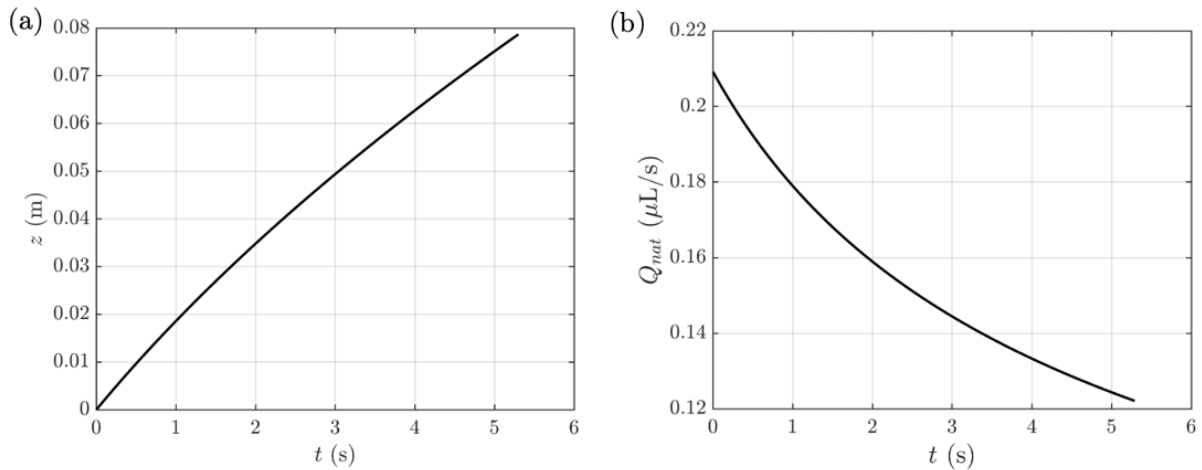


Fig.3. (a) Poziția în capilar a meniscului în funcție de timp pentru curgerea naturală, prin capilaritate, a celor două lichide imiscibile – rezultat obținut conform modelului teoretic. (b) Variația debitului natural în raport cu timpul pe măsură ce apa invadează capilarul.

Soluția este reprezentată grafic în figura de mai sus, atât pentru $z(t)$, cât și pentru debitul natural Q_{nat} , în care se consideră o tensiune superficială pentru ulei de 24 mN/m și un unghi de contact de aproximativ 50° , valori raportate și în alte studii anterioare [3], [6]. Lungimea coloanei de ulei este considerată ca valoare minimă, anume valoarea calculată pentru lungimea capilară a uleiului, $H_0 = 2$ mm.

Fig. 3-b ne indică un prag inferior pentru debitul de extragere, în jurul valorii de $0.21 \mu\text{L/s}$ pentru cel mai mare debit atins în curgere naturală. Experimentele au vizat debite mai mari de $1 \mu\text{L/s}$ pentru a asigura condiția de debit minim în raport cu acest prag natural de curgere.

Capilarul umplut cu ulei a fost adus în contact cu suprafața liberă a unui rezervor cu apă. La capătul opus s-a impus un debit de extragere constant, care determină pătrunderea apei în capilar și

deplasarea coloanei de ulei. Deoarece debitul impus depășește debitul natural generat de capilaritate, interfața dintre cele două lichide imiscibile devine concavă.

În funcție de valoarea debitului impus, această interfață poate deveni instabilă, ceea ce conduce la formarea unei picături la o anumită distanță față de capătul anterior al capilarului. Evoluția interfeței și detalii privind procesul de generare a picăturii sunt ilustrate în Fig. 4.

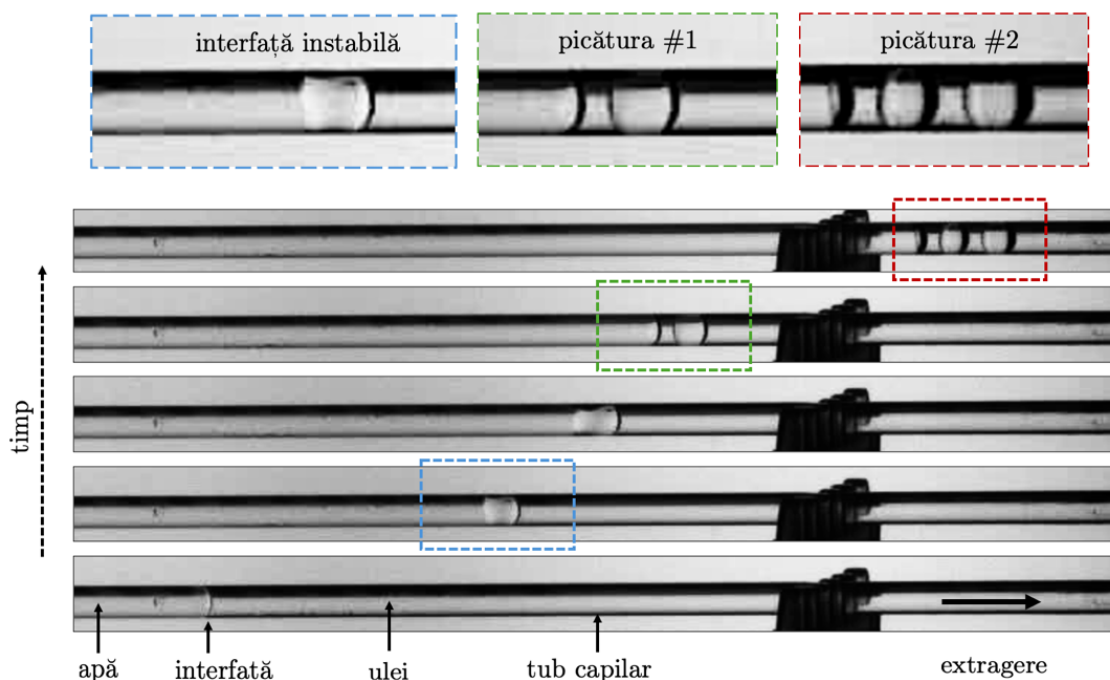


Fig.4. Serie de vizualizări a procesului de formare a două picături la un debit de $3 \mu\text{L/s}$

Picăturile de apă ocupă întreaga secțiune a capilarului și se deplasează împreună cu ansamblul format din cele două lichide imiscibile. Mișcarea acestora este favorizată de un strat subțire de ulei, rămas între picătură și peretele capilarului, care acționează ca un lubrifian, în același timp având rolul de a asigura integritatea picăturilor.

Distanța parcursă de interfață, necesară pentru a determina instabilitatea acesteia scade cu creșterea debitului, prima picătură formându-se mai aproape de intrarea lichidului în capilar. În Fig.5 se prezintă numărul maxim de picături și poziția acestora în capilar la momentul desprinderii în funcție de debitul de extragere.

Menționăm faptul că numărul maxim de picături formate este raportat pentru capilare cu o lungime egală cu 80 mm.

În diagrama de mai jos, datele experimentale arată că, în general, o creștere a debitului conduce la o creștere a frecvenței de formare a picăturilor. Pentru debite cuprinse între $3 \mu\text{L/s}$ și $5 \mu\text{L/s}$ nu se observă variații semnificative nici în ceea ce privește numărul de picături generate, nici în ceea ce privește poziția lor de formare, deși tendința globală se menține: la debite mai mari, picăturile apar mai aproape de intrarea lichidului în capilar.

Spre exemplu, la un debit de $2 \mu\text{L/s}$ se formează două picături, prima la aproximativ 40 mm de intrare, iar cea de-a doua la 60 mm. În schimb, la $7 \mu\text{L/s}$ se generează cinci picături: prima în jur de 20 mm, a doua la circa 30 mm, iar ultima la aproximativ 55 mm.

Pentru debite mai mari de $7 \mu\text{L/s}$ interfața capătă o formă elongată fapt care conduce la picături mult alungite, cu desprinderi dificil de prezis sau de controlat. Linia de contact rămâne mult în urmă și se agață de neregularitățile peretelui. Pentru debite mai mari, procesul de dezlocuire totală a uleiului este înlocuit cu un regim de curgere în care un strat de ulei va rămâne la peretele capilarului, strat care devine instabil generând multiple picături cu dimensiune variabilă. Pentru aplicațiile în care se dorește un regim de curgere cu formare recurentă și controlată a picăturilor, intervalul de debit este cuprins între $2 - 7 \mu\text{L/s}$.

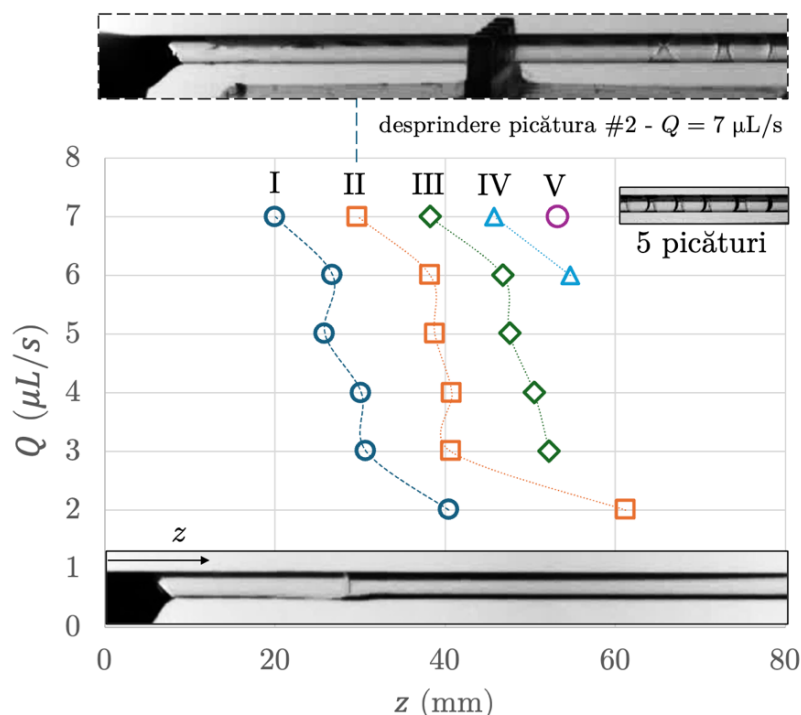


Fig.5. Diagramă debit-poziție în capilar care arată locul de formare al picăturilor și numărul acestora în funcție de debit pentru capilare având o lungime egală cu 80 mm.

Rezultatele obținute evidențiază capacitatea sistemelor capilare alcătuite din două lichide imiscibile de a genera picături prin ajustarea debitului de extragere. Totodată, acestea confirmă caracterul recurent al formării picăturilor la nivelul liniei de contact, precum și pozițiile caracteristice de apariție de-a lungul capilarului. În ansamblu, datele arată modul în care acest proces poate fi controlat prin reglarea debitului impuls.

3. Concluzii

Studiul evidențiază importanța cunoașterii parametrilor capilarității necesari pentru controlul formării picăturilor, incluzând influența debitului de extragere asupra procesului și relația dintre numărul și poziția picăturilor față de intrarea lichidului în capilar. Rezultatele obținute sprijină diversificarea metodelor de producere a picăturilor și oferă noi perspective în dezvoltarea biochipurilor, esențiale pentru aplicații precum diagnostic, analiză și administrare controlată de medicamente. Capacitatea de a genera picături în mod controlat și recurent susține integrarea

proceselor avansate de microfluidică în noile tehnologii, având un impact direct asupra îmbunătățirii sistemelor biochip și a progresului medicinei translaționale.

Lucrarea evidențiază și o limitare importantă: pentru debite mai mari de 7 $\mu\text{L/s}$, picăturile formate prezintă dimensiuni variabile, iar desprinderea lor devine dificil de anticipat, ceea ce reduce controlul asupra procesului. În acest regim, după dezlocuirea fluidului inițial, stratul subțire de ulei rămas pe peretele capilarului devine instabil și generează picături imprevizibile. Validarea experimentală a metodei, realizată prin diagrama de regim care corelează debitul de extragere cu numărul și poziția picăturilor, aduce o contribuție semnificativă la optimizarea tehnicilor de producere controlată a picăturilor și consolidează aplicabilitatea microfluidicii în domeniul biomedical.

În concluzie, studiul oferă o perspectivă detaliată asupra mecanismului de formare a picăturilor bazat pe instabilitatea liniei de contact dintre două lichide imiscibile și evidențiază modalități de îmbunătățire a tehnologiilor biochip utilizate în medicina translațională. Totodată, limitările identificate conturează direcții valoroase pentru cercetări viitoare, orientate spre reducerea variabilității dimensiunilor și frecvenței picăturilor și spre optimizarea condițiilor experimentale.

Mențiuni:

Lucrarea se bazează pe un studiu dezvoltat în cadrul Laboratorului de Reologie și Capilaritate - coordonator Dr. Claudiu Pătrașcu. Rezultatele au fost prezentate și publicate în extenso în cadrul conferinței BENG Conference 2025.

Studiul a beneficiat de resursele oferite în cadrul proiectelor de cercetare ale îndrumătorului științific, CNCS-UEFISCDI, PN-IV-P2-2.1-TE-2023-0288, PNCDI IV, respectiv GNAC-ARUT 38/2023.

Bibliografie

- [1] M. Park, B.-H. Kang, și K.-H. Jeong, "Based biochip assays and recent developments: A review," *BioChip Journal*, vol. 12, pp. 1-10, 2018.
- [2] S. Kar, S. S. Das, S. Laha, și S. Chakraborty, "Microfluidics on porous substrates mediated by capillarity-driven transport," *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 59, no. 9, p. 3644–3654, 2020.
- [3] S. Esmaeilzadeh, Z. Qin, A. Riaz, și H. A. Tchelepi, , "Wettability and capillary effects: Dynamics of pinch-off in unconfined straight capillary tubes," *Physical Review E*, vol. 102, no. 2, p. 023109, 2020.
- [4] J. Cai, Y. Chen, Y. Liu, S. Li, and C. Sun, "Capillary imbibition and flow of wetting liquid in irregular capillaries: A 100-year review," *Advances in Colloid and Interface Science*, vol. 304, p. 102654, 2022.

- [5] W. Guo, J. Hansson, și W. van der Wijngaart, "Capillary pumping independent of the liquid surface energy and viscosity," *Microsystems & nanoengineering*, vol. 4, no. 1, p. 2, 2018.
- [6] J. M. Song și T. Vo-Dinh, "Miniature biochip system for detection of escherichia coli o157: H7 based on antibody-immobilized capillary reactors and enzyme-linked immuno sorbent assay," *Analytica Chimica Acta*, vol. 507, no. 1, pp. 115-121, 2004.
- [7] M.Zimmermann, H.Schmid, P. Hunziker, and E. Delamarche, "Capillary pumps for autonomous capillary systems," *Lab on a Chip*, vol. 7, no. 1, pp. 119-125, 2007.
- [8] J. André și K. Okumura, "Capillary replacement in a tube prefilled with a viscous fluid," *Langmuir*, vol. 36, no. 37, p. 10952–10959, 2020.
- [9] B. Zhao, A. Pahlavan, L. Cueto-Felgueroso, and R. Juanes, "Forced wetting transition and bubble pinch-off in a capillary tube," *Physical Review Letters*, vol. 120, no. 02, 2018.
- [10] A. J. Laki, G. Z. Nagy, K. Iván, P. Fürjes, O. Jacsó, P. Civera și alții, "Integrated microcapillary system for microfluidic parasite analysis," *013 IEEE Biomedical Circuits and Systems Conference (BioCAS)*, pp. 118-121, 2013.
- [11] Pătrașcu Claudiu, Răsuceanu Ioana, "Capillary flow of water in tubes partially prefilled with oil," *Physical Review Fluids*, vol. 7, p. 114001, 2022.
- [12] J. F. Freitas, E. J. Soares, și R. L. Thompson, "Residual mass and flow regimes for the immiscible liquid–liquid displacement in a plane channel," *International journal of multiphase flow*, vol. 37, no. 6, p. 640–646, 2011.
- [13] I. Rasuceanu and C. Patrascu, "Capillary flow of two immiscible liquids initially separated by a taylor gas bubble," *Physics of Fluids*, vol. 36, no. 01, 2024.
- [14] P. Claudiu, *Dinamica fluidelor în sisteme biologice*, 2014.
- [15] C. Patrascu, *Procese de transport prin capilaritate*, București: Politehnica Press, 2024.