



DOI:10.22144/ctu.jvn.2023.039

KHẢO SÁT ĐẶC TÍNH VI LÔNG CỦA CHẤT LỎNG CÓ ĐỘ NHỚT CAO TRONG ỐNG VI MAO QUẢN BẰNG PHƯƠNG PHÁP SỬ DỤNG ÁP SUẤT HỖ TRỢ

Lê Sĩ Thiện và Lê Huyền Quyên*

Khoa Công nghệ Sinh Hóa – Thực phẩm, Trường Đại học Kỹ thuật – Công nghệ Cần Thơ

*Người chịu trách nhiệm về bài viết: Lê Huyền Quyên (email: lhquyen@ctu.edu.vn)

Thông tin chung:

Ngày nhận bài: 28/10/2022

Ngày nhận bài sửa: 10/11/2022

Ngày duyệt đăng: 10/11/2022

Title:

Investigation of microfluidic behavior of highly viscous fluid in micro-capillary using infiltration technique

Từ khóa:

Vi lỏng, độ nhớt, vi mao quản, mô phỏng

Keywords:

Microfluidic behavior, micro-capillary, simulation, viscosity

ABSTRACT

The microfluidic behavior of highly viscous in micro-capillary was investigated by the infiltration technique. Computational Fluid Dynamics (CFD) simulations were conducted to predict the flow behavior, filling time, and filling length. The results showed good agreement with experiments. The experimental results indicated that fluid viscosities were not found to depend on capillary dimensions, so the microscale viscosity can be regarded as equal to the bulk viscosity. This equivalence means that this technique can be employed to determine the melt viscosity of certain glasses. However, when using this method, the effects of the capillary radius and interfacial reactions between the filling glass melts and capillaries should be carefully investigated; otherwise, they can influence the precision of the measurement.

TÓM TẮT

Đặc tính vi lỏng của chất lỏng có độ nhớt cao trong ống vi mao quản được khảo sát bằng kỹ thuật sử dụng áp suất hỗ trợ. Các mô phỏng CFD được thực hiện để dự đoán đặc tính dòng chảy, thời gian và chiều dài dâng lên trong ống vi mao quản. Kết quả mô phỏng cho thấy sự tương đồng với thực nghiệm. Kết quả thực nghiệm chỉ ra rằng độ nhớt của chất lỏng trong ống vi mao quản không phụ thuộc đường kính của ống, vì thế độ nhớt đo được từ phương pháp này tương đương với độ nhớt được đo bằng những phương pháp thông dụng. Điều này cho phép kỹ thuật hỗ trợ áp suất có thể được sử dụng để xác định độ nhớt nóng chảy của một số loại thủy tinh nhất định. Tuy nhiên, độ chính xác của phương pháp này phụ thuộc phần lớn vào kích thước ống mao dẫn và những phản ứng bề mặt xảy ra giữa thủy tinh nóng chảy bên trong và ống mao quản.

1. GIỚI THIỆU

Trong khe hẹp vi mô hoặc vi mao quản, nhiều công bố đã chứng minh rằng mô hình dòng chảy vi lỏng có dạng tầng được xác định rõ, có nghĩa là dòng chảy được sắp xếp và điều chỉnh bởi vận tốc dòng chảy, kích thước mao quản và các đặc tính của chất lỏng (được kiểm soát bởi nhiệt độ và áp suất) (Groß et al., 2008; Hessel et al., 2009; Duncombe et al.,

2015). Ngoài ra, cấu trúc vi mô của vi mao quản cũng đóng một vai trò quan trọng trong việc kiểm soát mô hình dòng chảy vi lỏng (Ehrfeld et al., 1999; Kunowa et al., 2007; Kashid et al., 2011). Tuy nhiên, rất khó và tốn thời gian để tạo ra một cách chính xác cấu trúc vi mô phức tạp bằng các phương pháp phức tạp và đắt tiền như hệ thống cơ điện tử vi mô (MEMS) (Ikuta et al., 1994; Müller et al., 1995; Schueller et al., 1999), gồm đồng nung nhiệt độ thấp

(Groß et al., 2008), hoặc gia công bằng laser (Chryssoulouris, 1991; Kneissl et al., 1998). Do đó, một số nhà nghiên cứu đã đề xuất một công cụ khác chủ yếu dựa trên phương pháp hóa học để tạo nên cấu trúc vi mô bên trong các rãnh vi mô thẳng (Zhao et al., 2015). Ngoài ra, để đạt được quá trình chế tạo bằng phương pháp hóa học thích hợp, các hoạt động của chất lỏng vi mô phải được nghiên cứu như một hàm của nhiệt độ, áp suất và kích thước của rãnh vi mô. Vì thế, trong nghiên cứu này, một quy trình đơn giản và dễ triển khai đã được phát triển để khảo sát tính chất vi lỏng của chất lỏng có độ nhớt cao trong khe hẹp vi mô.

2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

Trong nghiên cứu này, tính chất của vi chất lỏng trong một dải độ nhớt rộng (từ 12,5 đến 10000 mPa s) được khảo sát bằng cách sử dụng một hệ thống tự thiết kế (xem Hình 1 và Hình 2). Quá trình này có thể được mô tả đơn giản như sau: một lượng đủ lớn chất lỏng nhớt được cho vào một thùng chứa, và sử dụng áp suất cao tác động từ bên ngoài để đẩy chất lỏng này qua một ống vi mao quản. Các chất lỏng được lựa chọn là bốn loại thủy tinh nóng chảy (tellurite, phosphate, borat và thủy tinh germanate) buộc phải đi qua các kích thước khác nhau của các vi mao quản (đường kính từ 2 đến 35 μm). Thủy tinh tan chảy được chọn làm công cụ nghiên cứu thay vì chất lỏng hữu cơ do:

- Chúng có thể cung cấp một loạt các độ nhớt ở các điều kiện khắc nghiệt (nhiệt độ và áp suất cao).
- Các phản ứng bề mặt giữa thủy tinh nóng chảy và thành ống vi mao quản do tác dụng hóa học và vật lý cũng là một khía cạnh đáng quan tâm để nghiên cứu.
- Dữ liệu lưu biến của thủy tinh nóng chảy cũng có thể được sử dụng để ước tính độ nhớt của chính chất nóng chảy bằng cách áp dụng lý thuyết thích hợp.

Có nhiều phương pháp để đo độ nhớt của thủy tinh, chẳng hạn như nhớt kế quay nóng thông thường, nhớt kế uốn chùm và nhớt kế mao quản (Malkin & Isayev, 2012). Tuy nhiên, kỹ thuật đo với sự hỗ trợ của áp suất được sử dụng trong nghiên cứu này có một số ưu điểm so với các phương pháp nêu trên:

- Chỉ cần một lượng nhỏ thủy tinh nóng chảy.
- Nó có thể được sử dụng để đo độ nhớt của chất nóng chảy độc hại hoặc nguy hiểm.

- Nó có thể được sử dụng ở nhiệt độ cao hơn, có nghĩa là chế độ độ nhớt thấp hơn của chất tan chảy có thể được nghiên cứu.

2.1. Phương pháp sử dụng áp lực cao

Lucas (1918), Washburn (1921) và Bosanquet (1923) đã chỉ ra sự cân bằng tổng thể của các lực lên chất lỏng bên trong ống mao dẫn bao gồm áp suất hiệu dụng, lực quán tính, lực nhớt và áp suất thủy tĩnh:

$$\Sigma p = \frac{8\eta L}{R^2} \dot{L} + \rho \frac{d(L\dot{L})}{dt} + p_h \quad (1)$$

Thực tế, phương trình (1) mô tả sự cân bằng động lượng khi một ống mao dẫn có bán kính bên trong R được đưa vào chất lỏng có khối lượng riêng ρ . Dưới tác dụng của áp suất toàn phần Σp , sau một thời gian t nhất định, chất lỏng dâng lên đến độ cao L . Áp suất toàn phần gồm áp suất mao quản $p_c = 2\sigma\cos\theta/R$ (σ và θ lần lượt là sức căng bề mặt và góc tiếp xúc) và bất kỳ lực cơ thể tác dụng nào khác p_A . p_h là áp suất thủy tĩnh $p_h = \rho g L$ (g là gia tốc trọng trường).

Giả sử không có hiệu ứng quán tính (chỉ có dòng chảy tầng) và bỏ qua trọng lực, phương trình (1) rút gọn như sau:

$$p_c + p_A = \frac{8\eta L}{R^2} \dot{L} \quad (2)$$

Hoặc

$$\frac{2\sigma\cos\theta}{R} + p_A = \frac{8\eta L}{R^2} \dot{L} \quad (3)$$

Suy ra:

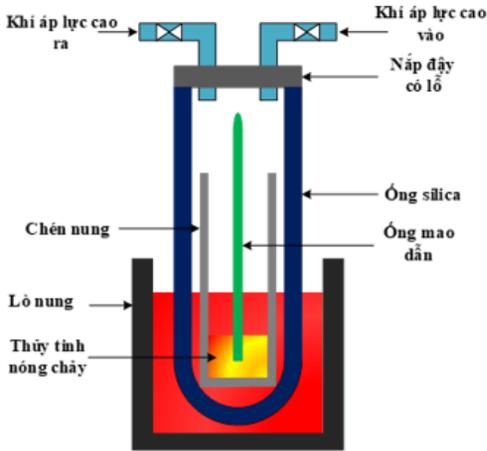
$$L^2 = \left(\frac{R\sigma\cos\theta}{2\eta} + \frac{R^2 p_A}{4\eta} \right) t \quad (4)$$

Từ phương trình (2), (3) và (4) ở trên, ta tính được độ nhớt động học:

$$\eta = \left(\frac{2R\sigma\cos\theta + R^2 p_A}{4L^2} \right) t \quad (5)$$

Bởi vì sức căng bề mặt của thủy tinh nóng chảy nhỏ hơn nhiều so với 1,0 N/m, phương trình (5) có thể được đơn giản hóa hơn nữa khi sử dụng áp suất cao p_A , tức là $Rp_A \gg 2\sigma\cos\theta$:

$$\eta = \frac{R^2 p_A}{4L^2} t \quad (6)$$



Hình 1. Thiết lập thí nghiệm của phương pháp áp lực cao

2.2. Phương pháp chân không

Động lực dâng lên của mao dẫn khí sử dụng phương pháp chân không được mô tả bằng phương trình (1), nhưng không thể bỏ qua ảnh hưởng của lực hấp dẫn. Fries và Dreyer (2008) đã đưa ra một thuật ngữ gọi là độ cao cân bằng (L_{eq}) để đánh giá sự ảnh hưởng của lực hấp dẫn, ước tính bằng phương trình cân bằng sau:

$$\rho g L_{eq} = P_A + \frac{2\sigma \cos\theta}{R} \tag{7}$$

Nếu chiều dài lấp đầy thực nghiệm L cao hơn $0.1L_{eq}$ thì phải tính đến trọng lực (tức là áp suất thủy tĩnh p_h trong trường hợp này). Do đó, sau khi bỏ qua tác dụng lực quán tính, phương trình (1) trở thành:

$$p_c + p_A - p_h = \frac{8\eta L}{R^2} \dot{L} \tag{8}$$

Sau khi lấy tích phân (Xue et al., 2006):

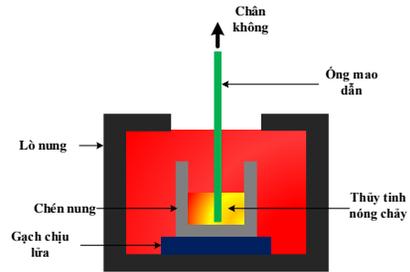
Bảng 1. Thành phần thủy tinh được sử dụng để đo độ nhớt

Thủy tinh	Thành phần (mol.%)	Nhiệt độ nóng chảy (°C)	T_g (°C)	Loại cốc nung	
TE01	75TeO ₂ -10ZnO-15Na ₂ O	800	273,5	Vàng	
TE02	77TeO ₂ -20,5ZnO-2,5La ₂ O ₃	700	340,5	Vàng	
BO01	75B ₂ O ₃ -25Na ₂ O	900	462,5	Platinum	
GE01	60GeO ₂ -5WO ₃ -35Bi ₂ O ₃	1100	560,4	Nhôm	
SP00		0	800	343,0	
SP05		5	800	342,0	
SP09	x	9	800	348,0	Platinum
SP14		14	800	343,0	
SP19		19	800	340,0	

Các thiết lập thí nghiệm cho phương pháp áp lực cao và phương pháp chân không lần lượt được thể

$$\frac{\rho g R^2}{8\eta} t + L = -\frac{2\sigma \cos\theta + R p_A}{\rho g R} \ln \left(1 - \frac{\rho g R L}{2\sigma \cos\theta + R p_A} \right) \tag{9}$$

Từ phương trình (9), khi biết góc tiếp xúc và sức căng bề mặt, có thể ước lượng độ nhớt động học sau một thời gian lấp đầy t nhất định với chiều cao lấp đầy L tương ứng.



Hình 2. Thiết lập thí nghiệm của phương pháp chân không

2.3. Phương pháp thí nghiệm

Các loại thủy tinh đều được chuẩn bị bằng kỹ thuật nấu chảy và làm nguội thông thường. Các loại bột oxit hoặc muối được cân, trộn và nấu chảy trong loại chén nung phù hợp với từng loại thủy tinh. Thành phần thủy tinh, nhiệt độ nóng chảy, nhiệt độ chuyển tiếp thủy tinh và vật liệu của cốc nung được trình bày trong Bảng 1. Nhiệt độ chuyển tiếp của thủy tinh trong phòng thí nghiệm T_g của thủy tinh được xác định bằng phương pháp đo nhiệt lượng với tốc độ gia nhiệt 20 K/min (calorimetric T_g , Netzsch DSC 404 F1).

Lực căng bề mặt của thủy tinh ở các nhiệt độ khác nhau được trình bày trong Bảng 2 để đánh giá độ nhớt động học.

hiện trong Hình 1 và Hình 2. Quy trình làm đầy cho kỹ thuật hỗ trợ áp suất có sáu bước chính:

1) Chuẩn bị một lò nung chuyên dụng với hệ thống áp suất ở nhiệt độ cần thiết để đo độ nhớt.

2) Cho một lượng nhỏ mẫu thủy tinh vào chén nung bằng kim loại quý (bán kính trong 2 mm).

3) Nhúng một đầu của ống mao dẫn vào chén nung. Đầu kia của ống mao dẫn được làm kín bằng cách nung chảy.

4) Đưa cốc nung và ống mao dẫn vào ống silica (có thể bỏ qua bước này khi sử dụng phương pháp chân không).

5) Đưa ống silica vào lò nung.

6) Bật hệ thống áp suất và lấy ống mao dẫn ra sau một thời gian nhất định để đo chiều dài thủy tinh lỏng dâng lên trong ống.

Chiều dài làm đầy trong các ống mao quản được đo bằng kính hiển vi quang học (Nikon Eclipse LV100). Các mao quản có bán kính bên trong khác nhau từ 2 đến 35 μm đã được chọn để tiến hành thí nghiệm. Tất cả ống các mao quản này được tạo ra từ thủy tinh Heraeus Suprasil 301 (99,9% SiO₂) với đường kính ngoài 200,0 μm. Trong trường hợp của phương pháp áp lực cao, một áp suất bên ngoài từ 10 đến 30 bar được đặt vào hệ thống để ước tính độ nhớt của các loại thủy tinh nói trên. Mặt khác, áp suất khí quyển không cân bằng là 0,96 bar khi sử dụng phương pháp chân không. Mỗi quá trình làm đầy được lặp lại mười lần để đảm bảo độ chính xác của thí nghiệm

Bảng 2. Sức căng bề mặt của các loại thủy tinh ở nhiệt độ tương ứng (SciGlass - Glass Property Information System, SciGlass 7.12)

Thủy tinh	Sức căng bề mặt (N/m)										
	700°C	750°C	800°C	850°C	900°C	950°C	1000°C	1050°C	1100°C	1150 °C	1200 °C
TE01	0.168	0.167	0.166								
TE02	0.144	0.143	0.143								
BO01			0.156	0.155	0.154	0.154	0.153	0.152			
GE01			0.244	0.243	0.242	0.241	0.239	0.238	0.237	0.236	0.235
SP00	0.267	0.266	0.264								
SP05	0.266	0.265	0.264								
SP09	0.268	0.267	0.266								
SP14	0.271	0.270	0.268								
SP19	0.274	0.273	0.272								

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. So sánh phương pháp áp lực cao và phương pháp chân không

Độ nhớt của TE01 và TE02 ở trạng thái nóng chảy thu được từ cả hai phương pháp áp lực cao và chân không được trình bày trong Hình 3.

Hình 3a (TE01) cho thấy sự khác biệt giữa phương pháp áp lực cao và phương pháp chân không. Thật vậy, độ nhớt của loại trước cao hơn gần mười lần so với loại sau. Điều này có thể được giải thích theo một số cách:

1) Nhiệt độ chuyển tiếp có thể thay đổi dưới áp suất cao; sự thay đổi này thậm chí còn đáng chú ý hơn trong thủy tinh nóng chảy thấp với kết nối mạng thấp (Wondraczek & Mauro, 2009a; Wondraczek et al., 2009b). Do đó, độ nhớt có thể bị ảnh hưởng bởi sự thay đổi này.

2) Dựa trên lý thuyết thể tích tự do, trạng thái nóng chảy có thể bị đông đặc bởi áp suất và do đó trở nên nhớt hơn (Schmelzer et al., 2005). Hơn nữa, Schmelzer et al. (2005) cũng đề xuất một phương

trình mô tả mối quan hệ giữa độ nhớt và áp suất ở nhiệt độ không đổi:

$$\left(\frac{\partial \eta}{\partial p}\right)_T = -\frac{\kappa_T(p,T)}{\alpha_T(p,T)} \left(\frac{\partial \eta}{\partial T}\right)_p \tag{10}$$

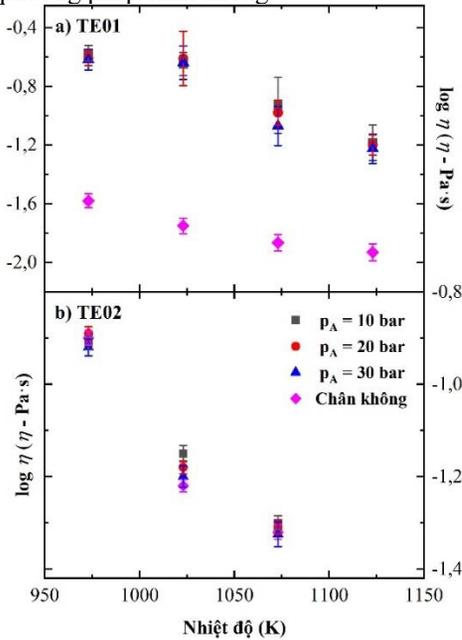
Trong đó κ_T là khả năng nén đẳng nhiệt and α_T là hệ số giãn nở đẳng nhiệt. Khi $\kappa_T > 0$, $\alpha_T < 0$, $\left(\frac{\partial \eta}{\partial p}\right)_T > 0$ và $\left(\frac{\partial \eta}{\partial T}\right)_p < 0$, độ nhớt đo ở áp suất cao dự kiến sẽ lớn hơn độ nhớt đo trong điều kiện chân không.

3) Một cách giải thích khác là sự xuất hiện của các bong bóng trong quá trình dâng đầy mao quản (Thamdrup et al., 2007); những bong bóng này có thể gây ra sự gia tăng lực cản chất lỏng, làm giảm tốc độ lấp đầy của chất lỏng. Do đó, khi nhiều bọt xuất hiện trong thủy tinh nóng chảy trong quá trình điền đầy ống mao quản, chiều dài cột thủy tinh nóng chảy dâng lên bên trong có thể được rút ngắn, và tất nhiên, độ nhớt đo được tăng lên trong trường hợp này theo phương trình (5). Trong trường hợp TE01, độ nhớt thu được từ phương pháp chân không chính xác hơn vì động lực dâng lên trong ống của phương

pháp chân không chủ yếu phụ thuộc vào lực mao dẫn, sức căng bề mặt và đặc tính thấm ướt của chất chảy thay vì áp suất tác dụng.

Mặt khác, Hình 3b (TE02) cho thấy sự thống nhất giữa cả hai phương pháp. Đặc tính khác nhau của độ nhớt dưới áp suất cao giữa TE01 và TE02 có thể do sự khuếch tán mạnh của Na^+ trong TE01 (Da et al., 2011a), ít hơn nhiều so với La^{3+} trong TE02, hoặc do TE02 có thể tích tự do nhỏ hơn, có thể làm giảm đáng kể sự thay đổi độ nhớt ở áp suất cao.

Nhìn chung, cả hai phương pháp, có áp suất và chân không đều có thể được áp dụng để đo độ nhớt của thủy tinh nóng chảy, nhưng phương pháp áp lực cao nên được xử lý cẩn thận bởi các lý do đã nêu ở trên. Do đó, để giảm thiểu sai số trong phép đo độ nhớt, các giá trị độ nhớt của thủy tinh được trình bày trong các phần tiếp theo chỉ là những giá trị thu được bằng phương pháp chân không.



Hình 3. So sánh độ nhớt đo được từ phương pháp áp lực cao và chân không. a) TE01, b) TE02

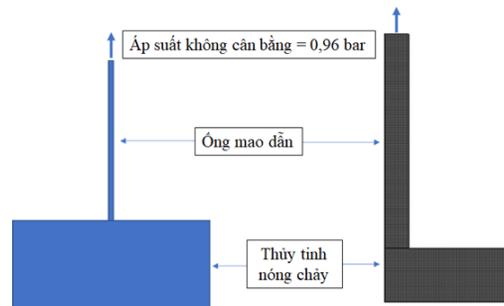
3.2. Đặc tính của dòng chảy, ước tính chiều dài và thời gian làm đầy

3.2.1. Kết quả mô phỏng quá trình lấp đầy

Phần mềm COMSOL Multiphysics (V5.3a) được sử dụng để mô phỏng và khảo sát đặc tính dòng

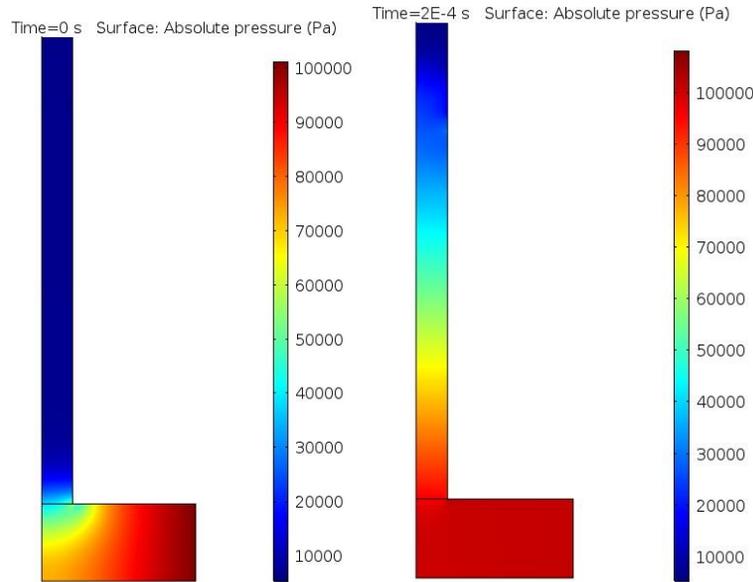
chảy của quá trình dâng lên trong ống mao dẫn và ước tính thời gian lấp đầy cho thí nghiệm. Mô phỏng sử dụng mô hình hình học đối xứng trục 2D, dòng không nén hai pha và mô-đun Laminar, Level Set. Mô-đun này sử dụng các phương trình Navier – Stokes để điều khiển vận chuyển khối lượng và động lượng cũng như phương pháp đặt mức để theo dõi giao diện giữa thủy tinh tan chảy và không khí. Các mao quản khác nhau có bán kính bên trong từ 2 đến 35 μm được chọn làm thông số đầu vào cho mô phỏng.

Hình 4 minh họa về khái niệm mô phỏng (trong mặt phẳng đối xứng trục) và mô hình được xác định trong COMSOL. Trong mô hình này, mạng lưới mắc xích (mesh) được chọn sử dụng có dạng lưới tứ giác theo cấu trúc (structured quadrilateral mesh) do dòng chảy được mô phỏng trong ống được dự đoán có dạng chảy tầng và di chuyển đều ở tất cả các vị trí trong ống, kích thước của mắc xích là $10^{-4} \mu m$ được chọn để có thể theo dõi sự biến đổi tại bề mặt của chất lỏng một cách chính xác. Hệ thống bao gồm một ống mao dẫn được ngâm trong một cốc chứa thủy tinh nóng chảy; ở một đầu của ống mao dẫn áp suất không cân bằng 0,96 bar để hút chất nóng chảy ra.



Hình 4. Hình minh họa tổng thể và mô hình mô phỏng bằng COMSOL trong mặt phẳng đối xứng trục

- ❖ Đặc tính dòng chảy
- Biên dạng áp suất



Hình 5. Biên dạng áp suất của quá trình lấp đầy trong mặt phẳng đối xứng ($r = 10 \mu\text{m}$, $t = 0\text{s}$ và $200 \mu\text{s}$)

Hình 5 (bên trái) cho thấy biên dạng áp suất mô phỏng của thủy tinh nóng chảy trong một ống mao dẫn $10 \mu\text{m}$, với các giá trị ban đầu của độ nhớt, mật độ và sức căng bề mặt lần lượt là $0,025 \text{ Pa s}$, $4,8238 \text{ g/cm}^3$, and $0,168 \text{ N/m}$. Nó chỉ ra rõ ràng rằng có một động lực trong ống mao dẫn do áp suất không cân bằng ở đầu ra. Hơn nữa, trong khi cả hai đầu của ống mao dẫn vẫn ở áp suất không đổi, áp suất bên trong ống mao dẫn thay đổi dần dần theo thời gian do sự chuyển động của thủy tinh nóng chảy.

– Biên dạng vận tốc

Biên dạng vận tốc của quá trình lấp đầy trong ống mao quản có thể được chia thành hai bước:

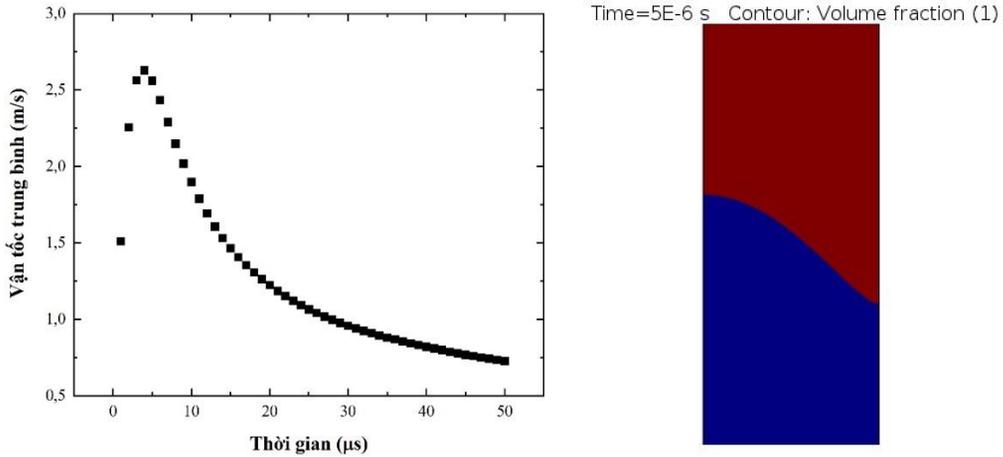
– Bước 1 (từ 0 đến $5 \mu\text{s}$): Khi bắt đầu quá trình mao dẫn, thủy tinh nóng chảy bắt đầu chảy vào ống mao quản, vận tốc đột ngột tăng lên và gây ra một mặt khum lõm (Hình 6).

– Bước 2 (sau $5 \mu\text{s}$ đến khi kết thúc quá trình mao dẫn): vận tốc lấp đầy của thủy tinh nóng chảy giảm dần và ổn định theo thời gian dọc theo ống mao dẫn. Do vận tốc giảm, độ cao của cột mao dẫn không

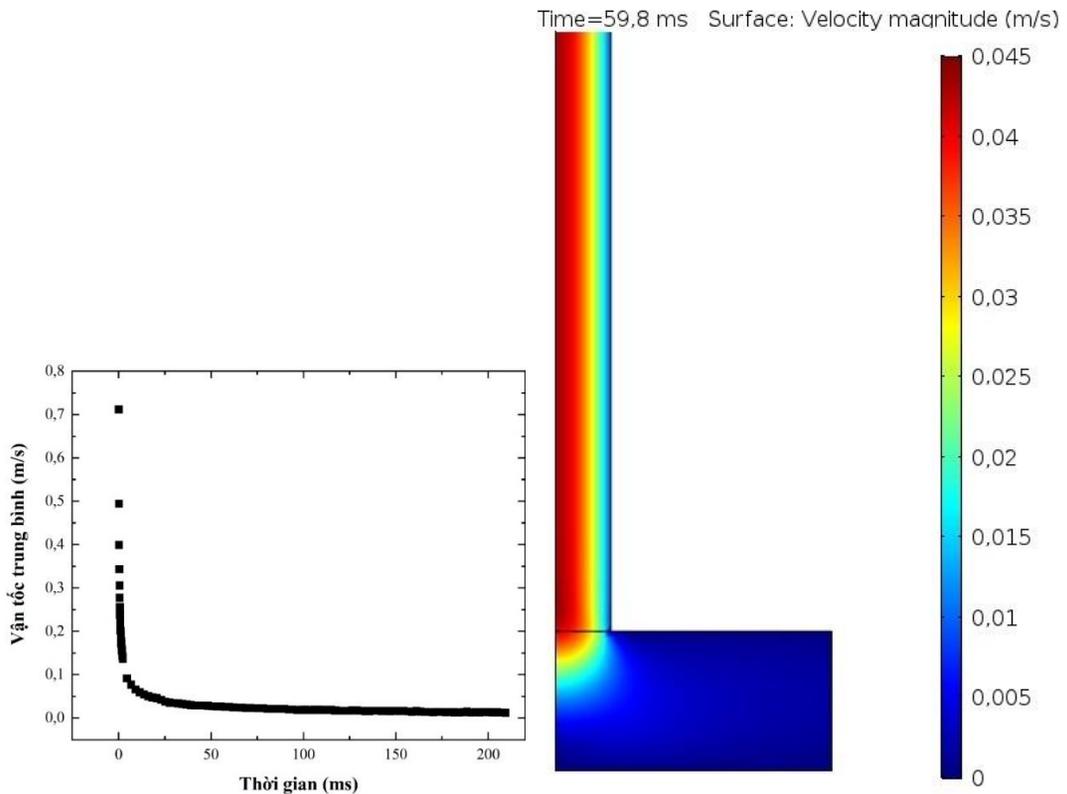
tăng tuyến tính theo thời gian mà thay vào đó có mối quan hệ quy luật lũy thừa với thời gian. Hiện tượng này sẽ được thảo luận trong phần dưới đây.

Hình 7 cho thấy rằng sau $5 \mu\text{s}$, tốc độ lấp đầy trong ống mao quản giảm nhanh chóng, và thủy tinh nóng chảy chuyển động như một dòng chảy tầng phát triển đầy đủ sau 50 ms . Khoảng thời gian này ngắn hơn nhiều so với thời gian của thí nghiệm, ít nhất là 60 s , và do đó phương trình Lucas-Washburn có thể áp dụng được (Weitz et al., 1987). Ngoài ra, biên dạng vận tốc cho thấy rằng vận tốc chất lỏng gần vách bằng không; thực tế này có thể giải thích tại sao một lớp thủy tinh mỏng xuất hiện trên thành sau một thời gian lấp đầy nhất định (Da et al., 2011a)

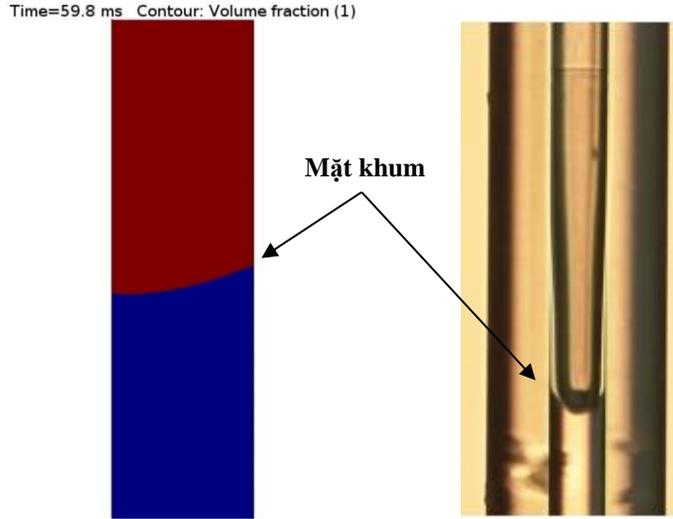
Hơn nữa, do tốc độ lấp đầy giảm và sự gia tăng chiều dài của cột chất lỏng bên trong ống mao quản, ở giai đoạn này ảnh hưởng của trọng lực và sức căng bề mặt quan trọng hơn (Fries & Dreyer, 2008). Do đó, mặt khum của thủy tinh nóng chảy trong bước này có dạng lõm giống như mặt khum của nước trong ống mao dẫn; kết quả này thể hiện sự tương đồng với thực nghiệm (Hình 8).



Hình 6. Vận tốc trung bình tại các thời điểm khác nhau tính bằng μs (trái) và hình khum ở 5 μs (phải) ($r = 10 \mu\text{m}$)



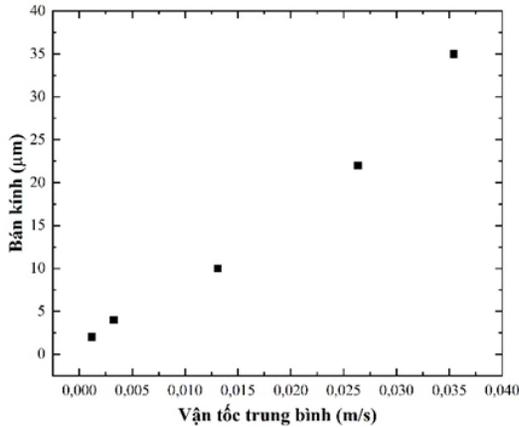
Hình 7. Vận tốc trung bình tại các thời điểm khác nhau (trái) và biên dạng vận tốc tại $t = 59,8 \text{ ms}$ (phải) ($r = 10 \mu\text{m}$)



Hình 8. Mặt khum mô phỏng (trái) ở 59,8 ms so với mặt khum thử nghiệm (phải)

– Vận tốc trong các ống mao quản có bán kính khác nhau

Mối quan hệ giữa vận tốc trung bình và bán kính ống mao dẫn ở cùng độ nhớt và thời gian được thể hiện trong Hình 9. Hình này chỉ ra rằng vận tốc của thủy tinh nóng chảy tăng theo kích thước của ống mao dẫn. Tuy nhiên, ở cùng một áp suất không cân bằng, vận tốc chỉ tăng rất ít đối với bán kính mao quản rất nhỏ, ví dụ 2 và 4 μm. Điều này có thể là do sự cản trở của diện tích mặt cắt ngang nhỏ của ống mao dẫn.



Hình 9. Vận tốc trung bình của thủy tinh nóng chảy ở ống mao quản có bán kính khác nhau (t = 200 ms)

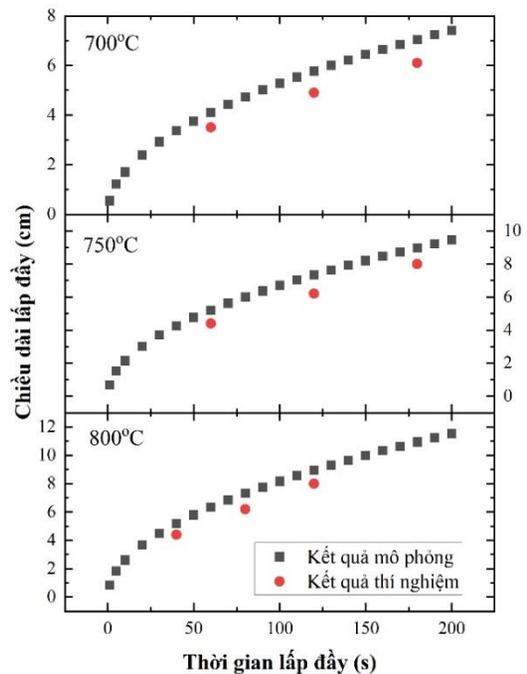
– Dự đoán chiều dài và thời gian dâng lên trong ống mao quản

Để đạt được kết quả tốt, mô hình CFD sử dụng phần mềm COMSOL, yêu cầu các mắt xích liên kết

(mesh) phải chính xác và các bước thời gian nhỏ. Tuy nhiên, do hạn chế về tài nguyên tính toán, mô hình chỉ được chạy cho đến khi vận tốc ổn định, như thể hiện trong Hình 7, và sau đó các giá trị này được điều chỉnh để tìm mối quan hệ giữa vận tốc và thời gian lấp đầy. Phương trình phù hợp có dạng:

$$\bar{u} = at^b \quad (11)$$

Trong đó \bar{u} là vận tốc trung bình (m/s) and t là thời gian điền đầy (s).



Hình 10. So sánh dữ liệu mô phỏng và thực nghiệm

Bảng 3 trình bày các thông số được sử dụng để phù hợp với vận tốc trong trường hợp bán kính mao quản 10 μm ở các nhiệt độ khác nhau.

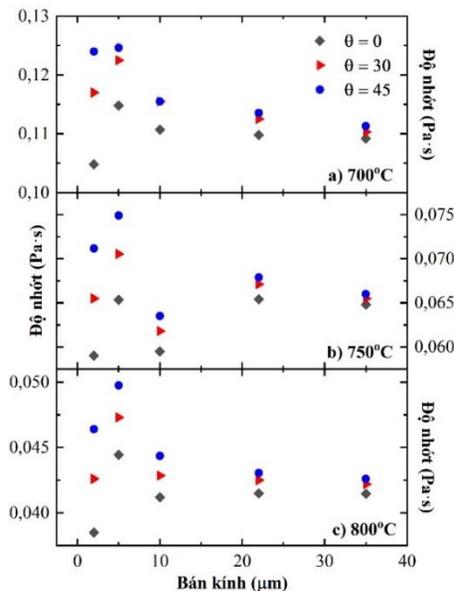
Bảng 3. Các thông số a và b của phương trình (11)

Nhiệt độ ($^{\circ}\text{C}$)	a	b
700	0,0055	-0,5090
750	0,0069	-0,5060
800	0,0083	-0,5040

Dựa trên các phương trình dự đoán, chiều dài lắp đặt ở các nhiệt độ lắp đặt khác nhau được tính toán và vẽ biểu đồ so sánh đối với dữ liệu thực nghiệm như trong Hình 10. So sánh kết quả mô phỏng và thực nghiệm cho thấy chúng tương ứng với nhau.

3.2.2. Ảnh hưởng của bán kính mao quản

Hình 11 trình bày dữ liệu độ nhớt từ TE02 ở trạng thái nóng chảy trong các ống mao quản có bán kính khác nhau ở các nhiệt độ khác nhau được thu lại bằng phương pháp chân không. Ở các góc tiếp xúc động giả định khác nhau, độ nhớt của TE02 rõ ràng phụ thuộc vào bán kính mao quản. Đặc biệt khi bán kính mao quản nhỏ hơn 20 μm , độ lệch của độ nhớt càng rõ ràng hơn. Hiện tượng này có thể được gây ra bởi các hiệu ứng hạn chế vi mô như trượt, hoặc sự thay đổi sức căng bề mặt, sức căng nội bề mặt và sự xuất hiện của bong bóng trong mao quản. Khi bán kính mao quản lớn hơn 20 μm , độ lệch này giảm đi và có thể quan sát thấy độ nhớt cân bằng. Do đó, có thể cho rằng độ nhớt không phụ thuộc vào bán kính mao quản khi $R > 20 \mu\text{m}$.



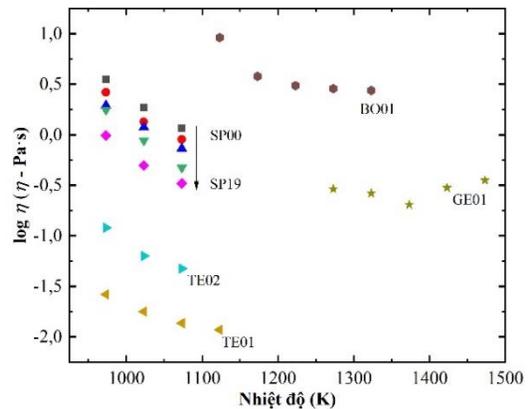
Hình 11. Độ nhớt của TE02 ở các bán kính mao quản khác nhau a) 700 $^{\circ}\text{C}$, b) 750 $^{\circ}\text{C}$ and c) 800 $^{\circ}\text{C}$

3.2.3. Độ nhớt của các loại thủy tinh khác nhau

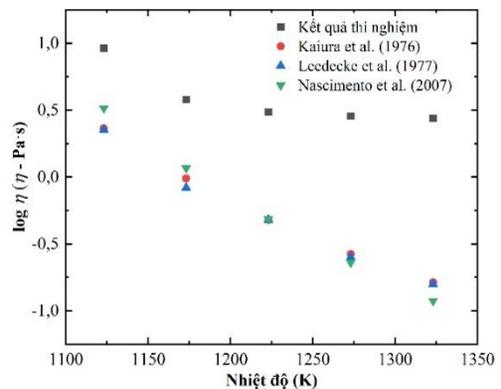
Độ nhớt của tất cả các loại thủy tinh đã chọn để tiến hành thí nghiệm (Bảng 1) được trình bày trong Hình 12. Nhìn chung, xu hướng của độ nhớt thu được bằng phương pháp chân không tương đồng với mối quan hệ thông thường giữa nhiệt độ và độ nhớt chất lỏng: độ nhớt có xu hướng giảm khi nhiệt độ tăng.

Cụ thể, mặc dù cả TE01 và TE02 đều chứa lượng thành phần chính (TeO_2) gần như nhau, nhưng độ nhớt của TE02 cao hơn TE01. Sự khác biệt này có thể do lượng ZnO ngày càng tăng và sự thay thế La_2O_3 bằng Na_2O trong TE02.

Độ nhớt giảm từ SP00 đến SP19, tương ứng với lượng SO_3 trong thành phần thủy tinh ngày càng tăng. Hiện tượng này có thể được giải thích là do sự khử trùng hợp của thủy tinh sulfophosphate tăng lên khi thay P_2O_5 bằng SO_3 , tức là có thêm SO_3 thì đặc tính ion của thủy tinh sulfophosphate tăng lên (Da et al., 2011b).



Hình 12. Độ nhớt của các loại thủy tinh khác nhau được đo bằng phương pháp chân không



Hình 13. Độ nhớt của BO01 trong tài liệu tham khảo và nghiên cứu này

Độ nhót của BO01 được so sánh với dữ liệu đã công bố (Hình 13) (Kaiura & Toguri, 1976; Leedecke & Bergeron, 1977; Nascimento & Aparicio, 2007). Độ nhót thu được từ nghiên cứu này cao hơn so với báo cáo của các tác giả khác, điều này có thể được giải thích bởi sự khuếch tán của SiO₂ từ mao quản vào thủy tinh BO01 trong quá trình mao dẫn. Trên thực tế, nếu khảo sát kỹ gián đồ pha của Na₂O-B₂O₃-SiO₂ (Ghanbari-Ahari & Cameron, 1993), có tới 70 mol% SiO₂ có thể tham gia cấu trúc mạng trong khoảng nhiệt độ từ 700°C đến 1000°C. Điều này có thể gây ra phản ứng bề mặt giữa BO01 nóng chảy và mao quản silica, hoặc ăn mòn mao quản. Những tác dụng phụ này có thể trở nên ảnh hưởng nhiều hơn khi nhiệt độ tăng lên, và như vậy, sự sai lệch về độ nhót giữa kết quả trong nghiên cứu này và các tài liệu càng lớn khi nhiệt độ càng cao.

Trong trường hợp của GE01, xu hướng của độ nhót là bất thường từ 1100°C vì các phản ứng nội bề mặt không thể bỏ qua. Cụ thể của trường hợp này sẽ được thảo luận trong phần tiếp theo.

3.2.4. Ảnh hưởng do phản ứng bề mặt

Ống mao dẫn được sử dụng trong phương pháp chân không được làm bằng silica, vì vậy phản ứng bề mặt giữa SiO₂ và thủy tinh được đo bên trong ống có thể ảnh hưởng đến phép đo độ nhót trong một số trường hợp. Ví dụ, độ nhót đo được của TE01 và TE02 có thể bị ảnh hưởng nếu bán kính mao quản nhỏ hơn 20 μm do một lớp Tellurite giàu silica hình thành ở mặt phân cách giữa mao quản và thủy tinh Tellurite (Da et al., 2011a).

Thành phần sulfophosphate chứa đầy trong các mao quản được phân tích bằng EDX (Bảng 4). Phân tích EDX này của thủy tinh sulfophosphate cho thấy chỉ 1,0% –2,0% SiO₂ (4% trong trường hợp SP00) khuếch tán vào thủy tinh đang chứa trong ống mao quản. Do đó, phản ứng bề mặt trong trường hợp này có thể được bỏ qua.

Theo Hình 12, độ nhót của GE01 bắt đầu tăng từ 1100°C, điều này trái với sự phụ thuộc vào nhiệt độ của độ nhót chất lỏng. Khi quan sát một đầu của ống mao dẫn được nhúng vào chất nóng chảy sau khi tiến hành thí nghiệm, hiện tượng ăn mòn trong quá trình lấp đầy đã xảy ra như Hình 14 (hình nhỏ). EDX đã được thực hiện để kiểm tra. Kết quả cho thấy một lượng lớn SiO₂ khuếch tán vào thủy tinh germanate khi bán kính mao quản nhỏ hơn 35 μm (Hình 14). Do đó, độ dài của cột thủy tinh germanate dâng lên trong ống mao quản có thể bị giảm khi đoạn cuối của ống mao dẫn bị ăn mòn nhanh chóng vì thế

gây ra sự gia tăng độ nhót, đặc biệt là ở nhiệt độ trên 1100°C.

Phản ứng bề mặt của BO01 với mao quản đã được thảo luận trong Phần 3.2.3 ở trên.

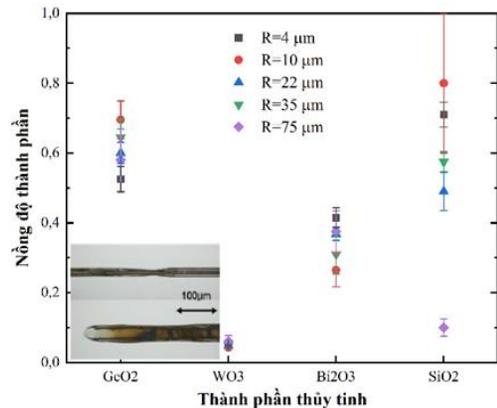
Bảng 4. Thành phần của thủy tinh sulfophosphate trong mao quản được xác định bằng EDX (mol%)

Thủy tinh	ZnO		Na ₂ O		SO ₃		P ₂ O ₅	
	TP***	sd	TP	sd	TP	sd	TP	sd
SP00*	27,7	13,3	36,8	8,6	0	0	35,5	4,7
SP05**	38,8	1,5	26,1	1,2	3,7	0,5	31,3	0,5
SP09**	34,7	2,9	30,2	2,7	6,7	0,8	28,3	0,8
SP14**	34,3	1,0	31,6	1,3	9,8	0,1	24,2	0,3
SP19**	37,1	0,2	24,4	3,4	17,3	0,7	21,3	0,9

* (4.0 ± 2.0)% SiO₂ trong SP00 khi chứa đầy ống mao quản

**1.0%–2.0% SiO₂ được tìm thấy trong thủy tinh khi chứa đầy trong ống mao quản

***TP: thành phần



Hình 14. Nồng độ thành phần của GE01 trong ống mao quản và sự khuếch tán hoặc ăn mòn của SiO₂ trong GE01

Hình bên trong: sự ăn mòn của ống mao quản trong quá trình làm đầy GE01 (hình trên: ống mao quản bán kính 22 μm ở 1050°C, hình dưới: ống mao quản bán kính 35 μm ở 1100°C sau khi làm đầy)

4. KẾT LUẬN

Một phương pháp có hỗ trợ áp suất (phương pháp chân không) đã được giới thiệu để nghiên cứu đặc tính dòng chảy của chất lỏng có độ nhót cao (thủy tinh nóng chảy) trong các rãnh vi mô khác nhau. Một mô hình được phát triển để nghiên cứu đặc tính của dòng chảy, thời gian và chiều dài lấp đầy dự kiến. Kết quả mô phỏng cho thấy vận tốc dòng chảy đột ngột tăng vào lúc bắt đầu thí nghiệm, nhưng sau đó giảm dần và sau đó đạt đến trạng thái

ổn định. Các kết quả mô phỏng này đã được xác nhận lại bằng các thí nghiệm thực tiễn.

Ngoài ra, dựa trên dữ liệu lưu biến thu được từ các thí nghiệm, độ nhớt của chất lỏng (thủy tinh tan chảy) có thể được ước tính, các ảnh hưởng của bán kính mao quản và phản ứng bề mặt giữa thủy tinh tan chảy và mao quản cũng đã được khảo sát. Thủy tinh Tellurite tan chảy có phản ứng bề mặt mạnh mẽ với các mao quản silica, nhưng độ nhớt có thể được giữ trong phạm vi chính xác có thể chấp nhận được bằng cách chọn bán kính mao quản thích hợp. Trong

khí thủy tinh sulfophosphate tương thích tương đối với SiO₂, thủy tinh germanate và borat bị ăn mòn đáng kể các ống mao quản silica ở nhiệt độ trên 1100°C, dẫn đến khó áp dụng phương pháp chân không. Nói chung, độ nhớt đo được không phụ thuộc vào kích thước mao quản, điều này chứng minh rằng độ nhớt đo bằng ống vi mao quản có thể được coi là tương đương với độ nhớt được đo bằng những phương pháp thông dụng. Điều này cho phép kỹ thuật hỗ trợ áp suất có thể được sử dụng để xác định độ nhớt nóng chảy của một số loại thủy tinh không tương tác với ống mao dẫn.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Bosanquet, C. H. (1923). LV. On the flow of liquids into capillary tubes. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 45(267), 525-531.
<https://doi.org/10.1080/14786442308634144>
- Chrysolouris, G. (1991). *Laser Machining: Theory and Practice*. Springer-Verlag Berlin.
- Da, N., Enany, A. A., Granzow, N., Schmidt, M. A., Russell, P. S. J., & Wondraczek, L. (2011a). Interfacial reactions between tellurite melts and silica during the production of microstructured optical devices. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 357(6), 1558-1563.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2010.12.032>
- Da, N., Grassmé, O., Nielsen, K. H., Peters, G., & Wondraczek, L. (2011b). Formation and structure of ionic (Na, Zn) sulfophosphate glasses. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 357(10), 2202-2206.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2011.02.037>
- Duncombe, T. A., Tentori, A. M., & Herr, A. E. (2015). Microfluidics: reframing biological enquiry [Review Article]. *Nature Reviews Molecular Cell Biology*, 16, 554.
<https://doi.org/10.1038/nrm4041>
- Ehrfeld, W., Golbig, K., Hessel, V., Löwe, H., & Richter, T. (1999). Characterization of Mixing in Micromixers by a Test Reaction: Single Mixing Units and Mixer Arrays. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 38(3), 1075-1082. <https://doi.org/10.1021/ie980128d>
- Fries, N., & Dreyer, M. (2008). An analytic solution of capillary rise restrained by gravity. *Journal of Colloid and Interface Science*, 320(1), 259-263.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jcis.2008.01.009>
- Ghanbari-Ahari, K., & Cameron, A. M. (1993). Phase Diagram of Na₂O-B₂O₃-SiO₂ System. *Journal of the American Ceramic Society*, 76(8), 2017-2022. <https://doi.org/doi:10.1111/j.1151-2916.1993.tb08326.x>
- Groß, G. A., Thelemann, T., Schneider, S., Boskovic, D., & Köhler, J. M. (2008). Fabrication and fluidic characterization of static micromixers made of low temperature cofired ceramic (LTCC). *Chemical Engineering Science*, 63(10), 2773-2784.
<https://doi.org/10.1016/j.ces.2008.02.030>
- Hessel, V., Renken, A., Schouten, J. C., & Yoshida, J. I. (2009). *Micro Process Engineering: A Comprehensive Handbook* (V. Hessel, A. Renken, J. C. Schouten, & J. I. Yoshida, Eds. Vol. 1-3). Wiley-VCH Verlag GmbH.
- Ikuta, K., Hirowatari, K., & Ogata, T. (1994). Three dimensional micro integrated fluid systems (MIFS) fabricated by stereo lithography. *Proceedings IEEE Micro Electro Mechanical Systems An Investigation of Micro Structures, Sensors, Actuators, Machines and Robotic Systems*, <https://doi.org/10.1109/MEMSYS.1994.555588>
- Kaiura, G. H., & Toguri, J. M. (1976). The viscosity and structure of sodium borate melts. *Physics and Chemistry of Glasses*, (17), 62-69.
- Kashid, M., Renken, A., & Kiwi-Minsker, L. (2011). Mixing efficiency and energy consumption for five generic microchannel designs. *Chemical Engineering Journal*, 167(2-3), 436-443.
<https://doi.org/10.1016/j.cej.2010.09.078>
- Kneissl, M., Hofstetter, D., Bour, D. P., Donaldson, R., Walker, J., & Johnson, N. M. (1998). Dry-etching and characterization of mirrors on III-nitride laser diodes from chemically assisted ion beam etching. *Journal of Crystal Growth*, 189-190, 846-849. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(98\)00307-8](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(98)00307-8)
- Kunowa, K., Schmidt-Lehr, S., Pauer, W., Moritz, H.-U., & Schwede, C. (2007). Characterization of Mixing Efficiency in Polymerization Reactors Using Competitive-Parallel Reactions.

- Macromolecular Symposia*, 259(1), 32-41.
<https://doi.org/10.1002/masy.200751305>
- Leedecke, C. J., & Bergeron, C. G. (1977). Viscous Flow in Binary Borate Melts. In L. D. Pye, V. D. Fréchet, & N. J. Kreidl (Eds.), *Borate glasses: structure, properties and applications* (Vol. 12, pp. 413-426). Plenum Press.
- Lucas, R. (1918). Ueber das Zeitgesetz des kapillaren Aufstiegs von Flüssigkeiten. *Kolloid-Zeitschrift*, 23(1), 15-22.
<https://doi.org/10.1007/BF01461107>
- Malkin, A. Y., & Isayev, A. I. (2012). *Rheology: Concepts, Methods, and Applications* ChemTec Publishing.
- Müller, H. U., David, C., Völkel, B., & Grunze, M. (1995). Nanostructuring of alkanethiols with ultrasharp field emitters. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena*, 13(6), 2846-2849.
<https://doi.org/10.1116/1.588302>
- Nascimento, M. L. F., & Aparicio, C. (2007). Data classification with the Vogel–Fulcher–Tammann–Hesse viscosity equation using correspondence analysis. *Physica B: Condensed Matter*, 398(1), 71-77.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.physb.2007.04.074>
- SciGlass - Glass Property Information System, SciGlass 7.12 In: SciGlass - Glass Property Information System, SciGlass 7.12.
- Schmelzer, J. W. P., Zanutto, E. D., & Fokin, V. M. (2005). Pressure dependence of viscosity. *The Journal of Chemical Physics*, 122(7), 074511.
<https://doi.org/10.1063/1.1851510>
- Schueller, O. J. A., Brittain, S. T., & Whitesides, G. M. (1999). Fabrication of glassy carbon microstructures by soft lithography. *Sensors and Actuators A: Physical*, 72(2), 125-139.
[https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S0924-4247\(98\)00218-0](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S0924-4247(98)00218-0)
- Thamdrup, L. H., Persson, F., Bruus, H., Kristensen, A., & Flyvbjerg, H. (2007). Experimental investigation of bubble formation during capillary filling of SiO₂ nanoslits. *Applied Physics Letters*, 91(16), 163505.
<https://doi.org/10.1063/1.2801397>
- Washburn, E. W. (1921). The Dynamics of Capillary Flow. *Physical Review*, 17(3), 273-283.
<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.17.273>
- Weitz, D. A., Stokes, J. P., Ball, R. C., & Kushnick, A. P. (1987). Dynamic Capillary-Pressure in Porous-Media - Origin of the Viscous-Fingering Length Scale. *Physical Review Letters*, 59(26), 2967-2970. <https://doi.org/DOI10.1103/PhysRevLett.59.2967>
- Wondraczek, L., & Mauro, J. C. (2009a). Advancing glasses through fundamental research. *Journal of the European Ceramic Society*, 29(7), 1227-1234.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsc.2008.08.006>
- Wondraczek, L., Krolikowski, S., & Behrens, H. (2009b). Relaxation and Prigogine–Defay ratio of compressed glasses with negative viscosity-pressure dependence. *The Journal of Chemical Physics*, 130(20), 204506.
<https://doi.org/10.1063/1.3141382>
- Xue, H. T., Fang, Z. N., Yang, Y., Huang, J. P., & Zhou, L. W. (2006). Contact angle determined by spontaneous dynamic capillary rises with hydrostatic effects: Experiment and theory. *Chemical Physics Letters*, 432(1), 326-330.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.cplett.2006.10.017>
- Zhao, D., Wang, G., He, Z., Wang, H., Zhang, Q., & Li, Y. (2015). Controllable construction of micro/nanostructured NiO arrays in confined microchannels via microfluidic chemical fabrication for highly efficient and specific absorption of abundant proteins [10.1039/C5TB00324E]. *Journal of Materials Chemistry B*, 3(20), 4272-4281.
<https://doi.org/10.1039/C5TB00324E>